

BEST AVAILABLE COPY

日本国特許庁

JAPAN PATENT OFFICE

17.01.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日
Date of Application:

2002年 1月21日

REC'D 14 MAR 2003

WPO PCT

出願番号
Application Number:

特願2002-012223

[ST.10/C]:

[JP2002-012223]

出願人
Applicant(s):

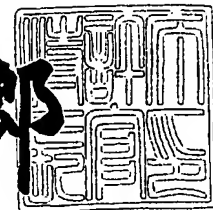
タイホー工業株式会社

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 2月25日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3010202

【書類名】 特許願

【整理番号】 T1P063X3

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C07F 13/00
C07C 69/54

【発明者】

【住所又は居所】 東京都文京区本郷2丁目35-16 コータス弓町40
2号

【氏名】 仲矢 忠雄

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市泉区和泉町5291 フォンテーヌAN
N 1-103

【氏名】 江藤 直伸

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県海老名市国分北1丁目33-15 レオパレス
BP246 A館102号

【氏名】 犀川 知行

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県藤沢市遠藤942-1 サンハイム大辻202
号

【氏名】 池田 厚

【発明者】

【住所又は居所】 東京都町田市本町田3486 藤の台団地1-48-3
04

【氏名】 木村 義弘

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市鶴見区北寺尾1丁目13-21

【氏名】 山内 隆夫

【特許出願人】

【識別番号】 000108546

【氏名又は名称】 タイホー工業株式会社

【代表者】 小坂田 弘三

【代理人】

【識別番号】 100087594

【弁理士】

【氏名又は名称】 福村 直樹

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2001-292509

【出願日】 平成13年 9月25日

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2001-317385

【出願日】 平成13年10月15日

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2001-319621

【出願日】 平成13年10月17日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 012069

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9722306

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

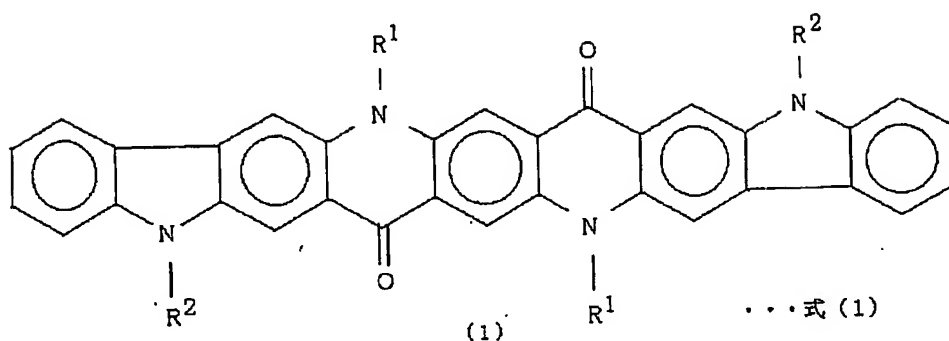
【発明の名称】 白色有機蛍光化合物

【特許請求の範囲】

【請求項1】

式(1)で示される白色有機蛍光化合物。

【化1】

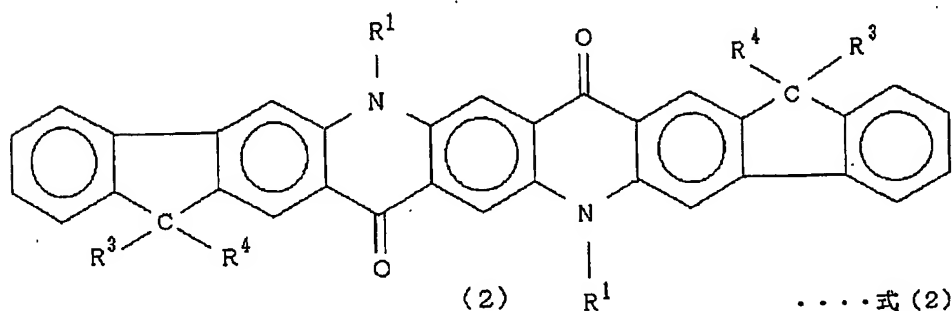


(但し、 R^1 は、水素原子、アルキル基、アリール基又はアリールアルキル基を示す。 R^2 は、水素原子、アルキル基、アリール基又はアリールアルキル基を示す。)

【請求項2】

式(2)で示される白色有機蛍光化合物。

【化2】



(但し、 R^1 は、水素原子、アルキル基、アリール基又はアリールアルキル基を示す。 R^3 、及び R^4 は、水素原子、アルキル基、アリール基又はアリールアルキル基であり、それぞれ同一の基であっても相違する基であっても良い。)

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

この発明は白色有機蛍光化合物に関し、さらに詳しくは、キナクリドン骨格を有することにより堅牢であり、加工性が良好で、大きな輝度で白色発光する白色有機蛍光化合物に関する。

【0002】

【従来の技術】

有機EL素子は、従来、R、G、及びBの三原色それぞれを発光させる素子及び白色発光素子を中心に開発が進められてきた。白色発光は、赤発光の化合物、青発光の化合物及び緑発光の化合物や複数の発光化合物を混色して白色発光を実現するものであった。

【0003】

しかしながら、単一化合物で白色蛍光を発する化合物は、殆ど知られていない。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

この発明の目的は、白色に発光可能な、例えば有機EL素子に利用可能な、単一化合物である白色有機蛍光化合物を提供することにある。この発明の他の目的は、有機EL素子等を初めとする各種の白色発光体に利用可能な白色有機蛍光化合物を提供することにある。この目的を達成するために鋭意研究した結果、従来においてはR、G、Bの三原色色素及び複数の色素を発光させ、これらを混色することにより白色発光を実現した。この発明においては、白色発光が可能な単一蛍光新化合物を合成し、高輝度、高純度白色及び高寿命EL素子として機能することを示すものである。

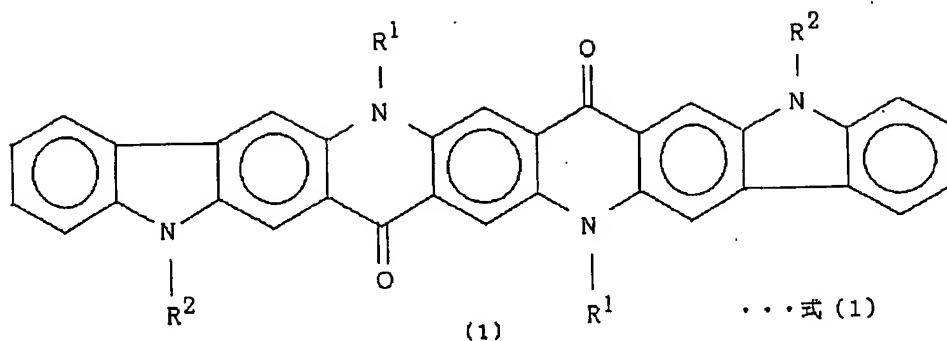
【0005】

【課題を解決するための手段】

前記課題を解決するための手段は、式(1)で示される白色有機蛍光化合物である。

【0006】

【化3】



【0007】

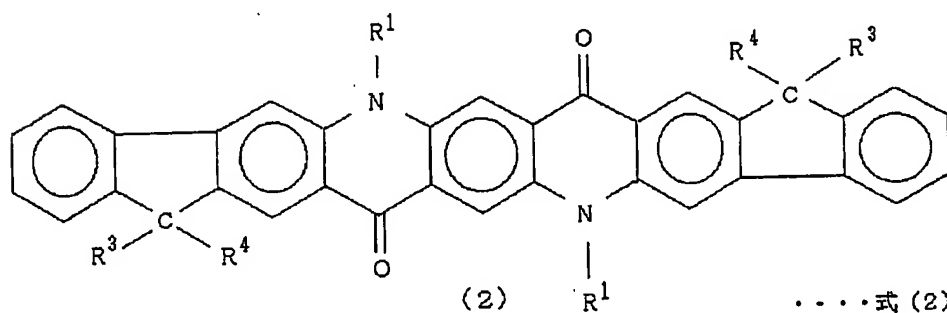
但し、 R^1 は、水素原子、アルキル基、アリール基又はアリールアルキル基を示す。 R^2 は、水素原子、アルキル基、アリール基又はアリールアルキル基を示す。

【0008】

前記課題を解決するための手段は、式(2)で示される白色有機蛍光化合物である。

【0009】

【化4】



【0010】

但し、 R^1 は、水素原子、アルキル基、アリール基又はアリールアルキル基を示す。 R^3 、及び R^4 は、水素原子、アルキル基、アリール基又はアリールアルキル基であり、それぞれ同一の基であっても相違する基であっても良い。

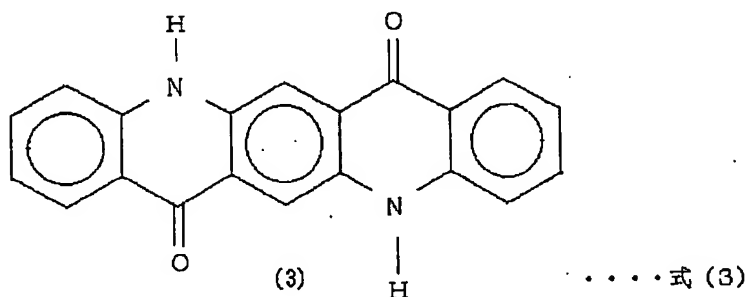
【0011】

【発明の実施の形態】

この発明に係る前記式(1)及び(2)で示される白色有機蛍光化合物はいずれも、式(3)で示されるキナクリドン骨格を有する。

【0012】

【化5】



【0013】

前記式(3)で示される化合物は、キナクリドン又はピグメントバイオレット19と称される顔料として周知である。このキナクリドンは、例えばジエチルスクシニルスクシナートとアニリンとを主原料として、例えば縮合、閉環、酸化を行って合成される。キナクリドン自体は、堅牢性、耐候性及び耐熱性に優れる(「色材工学ハンドブック」(社)色材協会編集、P402)。

【0014】

したがって、式(1)又は(2)で示される本発明に係る白色有機蛍光化合物も、堅牢性、耐候性、耐光性及び耐熱性に優れる。

【0015】

式(1)において、 R^1 は、水素原子、アルキル基、アリール基又はアリールアルキル基を示す。このアルキル基としては、例えば炭素数が1~30のアルキル基を挙げることができ、特にメチル基、エチル基、プロピル基等の、炭素数が1~5である低級アルキル基が好ましい。2個の R^1 は同一であっても相違していても良い。 R^1 がアリール基であるときのそのアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、アンスラニル基、ビフェニル基並びにこれらの芳香環にアルキ

ル基及びアルコキシ基等の置換基が結合した基を挙げることができる。 R^1 がア
リールアルキル基であるときのそのアリールアルキル基としては、ベンジル基、
1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルプロピル基、2-
フェニルプロピル基、3-フェニルプロピル基、5-フェニルブチル基等を挙げ
ることができ、フェニル基には更にアルキル基等の置換基が置換していても良い
。好ましいアリールアルキル基は、ベンジル基である。

【0016】

式(1)において、2個の R^2 はそれぞれ、水素原子、アルキル基、アリール
基又はアリールアルキル基であり、それぞれ同一の基であっても相違する基であ
っても良い。このアルキル基としては、例えば炭素数が1~30のアルキル基を
挙げることができ、特にメチル基、エチル基、プロピル基等の、炭素数が1~5
である低級アルキル基が好ましい。2個の R^2 は同一であっても相違していても
良い。 R^2 がアリール基であるときのそのアリール基としては、フェニル基、ナ
フチル基、アンスラニル基、ピフェニル基並びにこれらの芳香環にアルキル基及
びアルコキシ基等の置換基が結合した基例えばp-アルコキシフェニル基等を挙
げることができる。 R^2 がアリールアルキル基であるときのそのアリールアルキ
ル基としては、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1
-フェニルプロピル基、2-フェニルプロピル基、3-フェニルプロピル基、5
-フェニルブチル基等を挙げることができ、フェニル基には更にアルキル基等の
置換基が置換していても良い。好ましいアリールアルキル基は、ベンジル基であ
る。

【0017】

式(2)において、 R^1 は、前記式(1)において言及された意味と同じであ
る。

【0018】

式(2)において、 R^3 、及び R^4 は、水素原子、アルキル基、アリール基又
はアリールアルキル基であり、それぞれ同一の基であっても相違する基であつて
も良い。このアルキル基としては、例えば炭素数が1~30のアルキル基を挙げ
ることができ、特にメチル基、エチル基、プロピル基等の、炭素数が1~5であ

る低級アルキル基が好ましい。一つの炭素に結合する R^3 及び R^4 は同一であっても相違していても良い。 R^3 又は R^4 がアリール基であるときのそのアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、アンスラニル基、ビフェニル基並びにこれらの芳香環にアルキル基及びアルコキシ基等の置換基が結合した基例えばp-アルコキシフェニル基等を挙げることができる。 R^3 又は R^4 がアリールアルキル基であるときのそのアリールアルキル基としては、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルプロピル基、2-フェニルプロピル基、3-フェニルプロピル基、5-フェニルブチル基等を挙げることができ、フェニル基には更にアルキル基等の置換基が置換していても良い。好ましいアリールアルキル基は、ベンジル基である。

【0019】

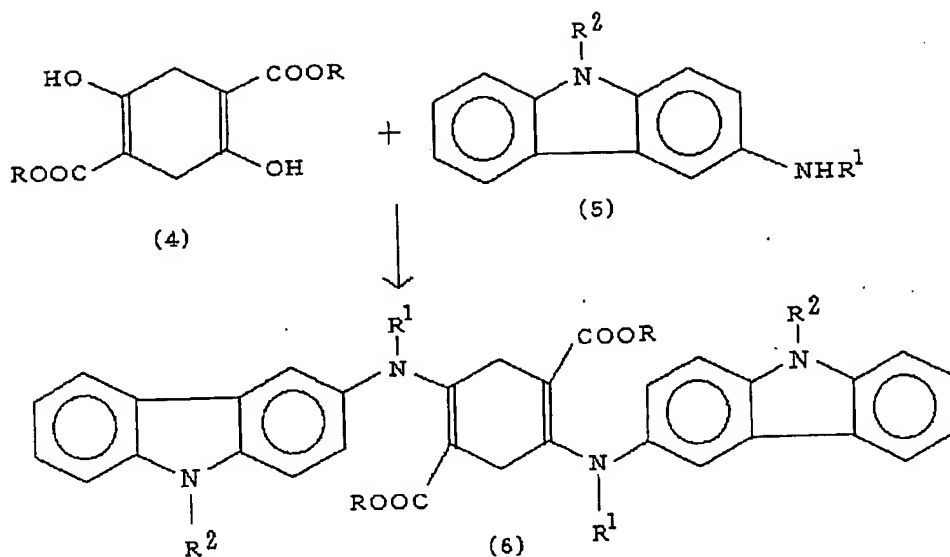
前記式(1)又は(2)で示される白色有機蛍光化合物は、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 の置換基を有することにより、溶媒に対する溶解性が向上し、したがって、適宜の溶媒に溶解することによる塗布性が向上し、また昇華温度が低下するので蒸着による加工性が向上し、さらに、高分子化合物との相溶性が向上するので高分子膜中に含めることができるようになる。

【0020】

式(1)で示される白色有機蛍光化合物は、例えば、以下の反応式に従って製造することができる。

【0021】

【化6】



【0022】

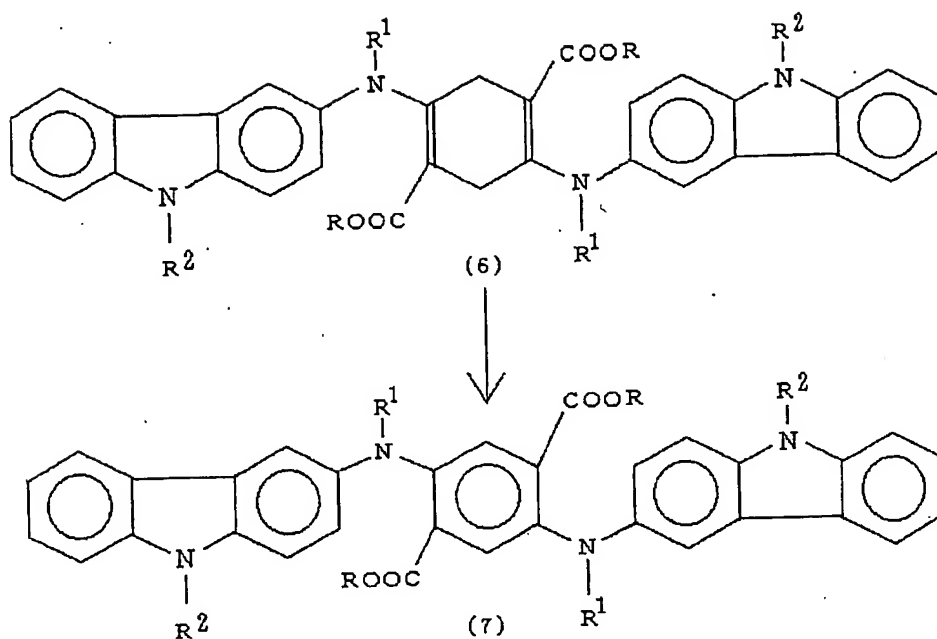
上記式中、Rは低級アルキル基であり、R¹及びR²は前記と同様の意味を有する。上記反応式は、例えば、ジアルキル 2, 5-ジヒドロキシ-1, 4-シクロヘキサジエン-1, 4-ジカルボキシレート（上記反応式中の化合物（4））と3-アミノ-9-アルキルカルバゾール等の化合物（5）とを適宜の溶媒中で加熱することにより進行する。脱水反応が進行して、アミノ基で架橋した化合物（6）が得られる。脱水反応には、適宜の脱水剤例えば濃硫酸等を使用することができる。

【0023】

上記脱水反応生成物をさらに濃硫酸等で処理すると、次式のように脱水素反応が起こる。

【0024】

【化7】



【0025】

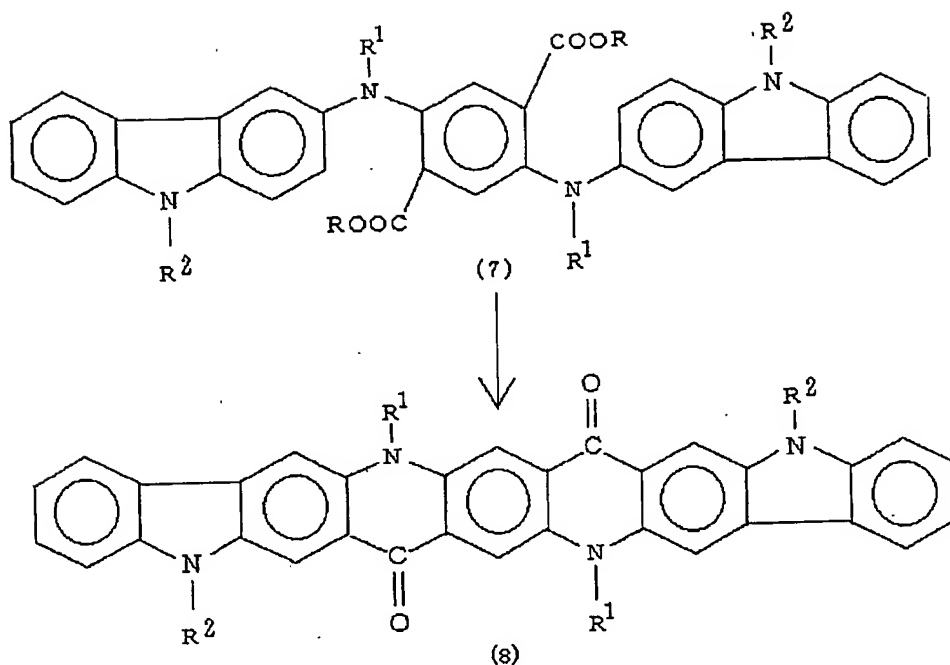
R^1 が水素原子の場合には、前記脱水素反応生成物に、例えばDMF中で R^1 Hal（ただし、Halはハロゲン原子を示す。）を反応させることにより、前記脱水素反応生成物をアルキル化させることができる。

【0026】

次いで、次の反応式により閉環反応を行う。

【0027】

【化 8】



【0028】

閉環反応は、適宜の溶媒中で加熱することにより、好ましくはp-トルエンスルホン酸等の有機酸触媒の存在下に適宜の溶媒例えばジクロロベンゼン等の不活性高沸点有機溶媒中で加熱することにより、進行する。閉環した化合物として上記式(8)で示されるカルバゾール骨格含有の白色有機蛍光化合物がある。

【0029】

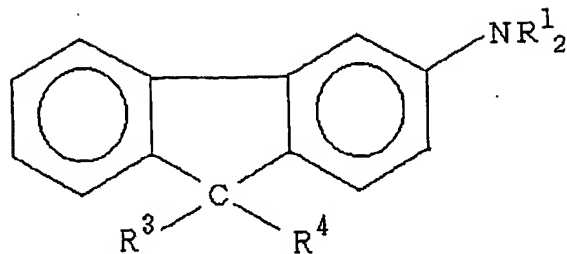
上記反応式において(8)で示される化合物はまた、前記式(1)で示されるところの、この発明に係る白色有機蛍光化合物である。

【0030】

前記(5)で示される化合物の代わりに、(9)で示される化合物を反応させると、式(2)で示される白色有機蛍光化合物が得られる。

【0031】

【化9】



(9)

.....式 (9)

【0032】

但し、式 (9) において、 R^1 、 R^3 及び R^4 は前記と同様の意味を有する。

【0033】

ジアルキル 2, 5-ジヒドロキシ-1, 4-シクロヘキサジエン-1, 4-ジカルボキシレート (前記反応式中の化合物 (4)) と前記式 (9) で示される 2-アミノ-フローレン等の化合物 (9) との反応は、これらを適宜の溶媒中で加熱することにより進行する。この反応生成物に対して、前記と同様に、脱水素反応及び閉環反応を行うことにより、この発明に係る式 (2) で示される白色有機蛍光化合物を得ることができる。

【0034】

この発明に係る白色有機蛍光化合物は、400~700nmの領域で発光が見られ、白色発光可能な有機EL素子に利用することができる。

【0035】

この有機EL素子は、ITO陽極と、ポリビニルカルバゾール (PVK)、2-(4-tert-ブチルフェニル)-5-(4-ピフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール及び白色有機蛍光化合物含有の発光層と、この発光層の表面に形成された陰極とを有して成る構造を有する。発光は、前記陰極と前記陽極との間に電界が印加されると、陰極側から電子が注入され、陽極から正孔が注入され、更に電子が発光層において正孔と再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーを光として放出する現象である。

【0036】

この有機EL素子は、陽極及び陰極の間に、この発明に係る白色有機蛍光化合物含有の発光層を有している限り様々のタイプの構造を採用することができる。この有機EL素子として、例えば、図1に示されるように、透明基板1の表面に形成された透明電極2と、その透明電極2の表面に形成されたところの、この発明に係る白色有機蛍光化合物を含有する発光層4と、この発光層4の表面に形成された陰極3とを備えて成る一層型有機発光素子を挙げることができる。

【0037】

この一層型有機発光素子において、発光層を、前記式(1)又は(2)で示される白色有機蛍光化合物を蒸着させることにより形成された蒸着層とすることができ、また、この発光層を、前記(1)又は(2)で示される白色有機蛍光化合物をポリビニルカルバゾール等の高分子化合物と共に有機溶媒に溶解し、得られる高分子溶液を塗布し、乾燥することにより得られる塗工層とすることもできる。

【0038】

又、これとは別のタイプの有機EL素子として、陽極と陰極との間に、電子を輸送する電子輸送性物質、この発明に係る白色有機蛍光化合物、及びホールを輸送するホール輸送性高分子を共に含有する発光層を有する一層型有機発光素子、基板上に形成された陽極と陰極との間に、ホール輸送性物質を含有するホール輸送層と、この発明に係る白色有機蛍光化合物含有の電子輸送性発光層とを積層して成る二層型有機低分子発光素子(例えば、陽極と陰極との間に、ホール輸送層と、ゲスト色素としてこの発明に係る白色有機蛍光化合物及びホスト色素を含有する発光層とを積層して成る二層型色素ドープ型発光素子)、陽極と陰極との間に、ホール輸送性物質を含有するホール輸送層と、この発明に係る白色有機蛍光化合物と電子輸送性物質とを共蒸着してなる電子輸送性発光層とを積層して成る二層型有機発光素子(例えば、陽極と陰極との間に、ホール輸送層と、ゲスト色素としてこの発明に係る白色有機蛍光化合物及びホスト色素とを含有する電子輸送発光層とを積層して成る二層型色素ドープ型有機発光素子)、陽極と陰極との間に、ホール輸送層、この発明に係る白色有機蛍光化合物含有の発光層及び電子輸送層を積層して成る三層型有機発光素子を挙げることができる。上記各種の有

機EL素子において、一層の発光層、並びに二層及び三層からなる積層体を有機層と称されることがある。

【0039】

上記有機EL素子は通常基板上に形成されることができる。この基板としては、例えばガラス、プラスチック等の透明基板を挙げることができる。

【0040】

前記陽極としては、仕事関数が大きくて透明であり、電圧を印加することにより前記膜にホールを注入することができる限り様々の素材を採用することができる。具体的には、陽極として、ITO、 In_2O_3 、 SnO_2 、 ZnO 、 CdO 等、及びそれらの化合物等の無機透明導電材料、及びポリアニリン等の導電性高分子材料等で形成することができる。

【0041】

この陽極は、前記基板上に、化学気相成長法、スプレーパイロリシス、真空蒸着法、電子ビーム蒸着法、スパッタ法、イオンビームスパッタ法、イオンプレーティング法、イオンアシスト蒸着法、その他の方法により形成されることができる。

【0042】

前記陰極は、仕事関数の小さな物質が採用され、例えば、MgAg、アルミニウム合金、金属カルシウム等の、金属単体又は金属の合金で形成されることができる。好適な陰極はアルミニウムと少量のリチウムとの合金電極である。この陰極は、例えば基板の上に形成された前記発光層を含む有機層の表面に、蒸着技術により、容易に形成することができる。

【0043】

前記電子輸送性物質としては、例えば、2-(4-tert-ブチルフェニル)-5-(4-ピフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール等のオキサジアゾール誘導体及び2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-オキサジアゾール、並びに2,5-ビス(5'-tert-ブチル-2'-ベンゾキサゾリル)チオフェン等を挙げることができる。また、電子輸送性物質として、例えばキノリノールアルミ錯体(A1q3)、ベンゾキノリノールベリリウム錯体(Bebq2)等の

金属錯体系材料を好適に使用することもできる。

【0044】

前記ホール輸送物質としては、トリフェニルアミン系化合物例えばN, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(m-トリル)-ベンジジン(TPD)、及び α -NPD等、ヒドラゾン系化合物、スチルベン系化合物、複素環系化合物、 π 電子系スターバースト正孔輸送物質等を挙げることができる。

【0045】

この有機EL素子における有機層は、塗布法例えばスピンキャスト法、コート法、及びディップ法、並びに蒸着法のいずれかにより形成されることができる。

【0046】

塗布法及び蒸着法のいずれを採用するにしても、電極と有機層との間に、バッファ層を介装するのが好ましい。

【0047】

前記陰極と前記有機層との間に形成される前記バッファ層を形成することのできる材料として、例えば、フッ化リチウム等のアルカリ金属化合物、フッ化マグネシウム等のアルカリ土類金属化合物、酸化アルミニウム等の酸化物、4, 4'-ビスカルバゾールビフェニル(Cz-TPD)を挙げることができる。また、例えばITO等の陽極と有機層との間に形成されるバッファ層を形成する材料として、例えばm-MTDATA(4, 4', 4''-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン)、フタロシアニン、ポリアニリン、ポリチオフェン誘導体、無機酸化物例えば酸化モリブデン、酸化ルテニウム、酸化バナジウム、フッ化リチウムを挙げることができる。これらのバッファ層は、その材料を適切に選択することにより、有機EL素子の駆動電圧を低下させることができ、発光の量子効率を改善することができ、発光輝度の向上を達成することができる。

【0048】

この発光素子における電子輸送性発光層は、通常の場合、50~80%のポリビニルカルバゾール(PVK)と、電子輸送性発光剤5~40%と、この発明に係る白色有機蛍光化合物0.01~20%(重量)とで形成されていると、白色

発光が高輝度で起こる。

【0049】

ホール輸送性高分子としては、例えばポリビニルカルバゾール、ポリ（3-アルキレンチオフェン）が挙げられる。また、この有機層中には、増感剤としてルブレンが含有されているのが好ましく、特に、ルブレンとAlq3とが含有されているのが好ましい。

【0050】

この発明に係る白色有機蛍光化合物を利用した有機EL素子は、例えば一般に直流駆動型の素子として使用することができ、また、パルス駆動型の素子及び交流駆動型の素子としても使用することができる。

【0051】

この発明に係る白色有機蛍光化合物は、更に、モノクロディスプレイ、カラーディスプレイ等のディスプレイ分野、ライトサイン、直視型サイン、間接照明、LCD用バックライト等の照明分野にも使用される。

【0052】

【実施例】

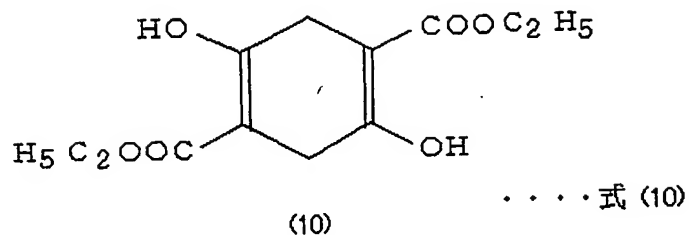
（実施例1）

＜脱水反応＞

1000mlの3口フラスコに3-アミノ-9-エチルカルバゾール 25.0 g (1.2×10^{-1} mol) と式(10)で示される化合物 13.6 g (6.0×10^{-2} mol) とを加えて、更に酢酸、エチルアルコール各々200ml加えた。シリコンオイルバスを用いて120℃まで加熱攪拌し、4時間反応した。反応終了後、室温まで冷却し、氷の中に投入した。

【0053】

【化10】



【0054】

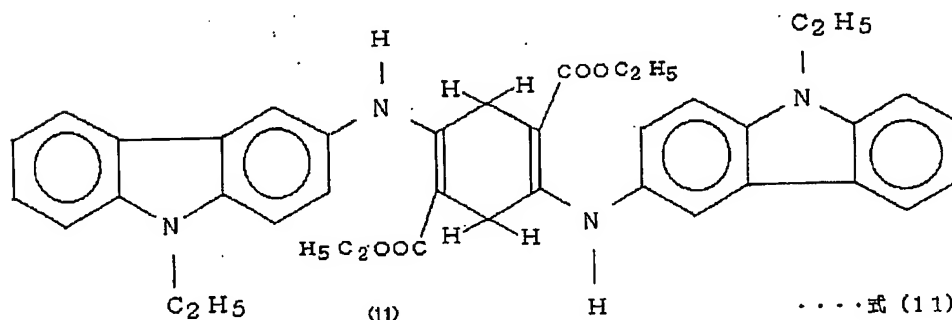
ガラスフィルターを用いて濾過した。フィルター内に残った固形物を5℃に冷却したメチルアルコール、及び石油エーテルで順次に洗浄した後、真空乾燥してレンガ色の粉体(35.2g)を得た。

【0055】

前記粉体のIRチャートを図2に示した。このレンガ色粉体は以下の式(11)で示される。

【0056】

【化11】



【0057】

<脱水素反応>

1000mlの3口フラスコに、前記脱水反応で得られた粉体25.0gを入れ、o-ジクロロベンゼン500mlを加えて、室温95%硫酸1.0gを徐々に滴下し30分間攪拌した後、シリコンオイルバスを用いて160℃までに加熱攪拌し、2時間反応した。反応終了後、室温まで冷却し、氷の中に投入した。

【0058】

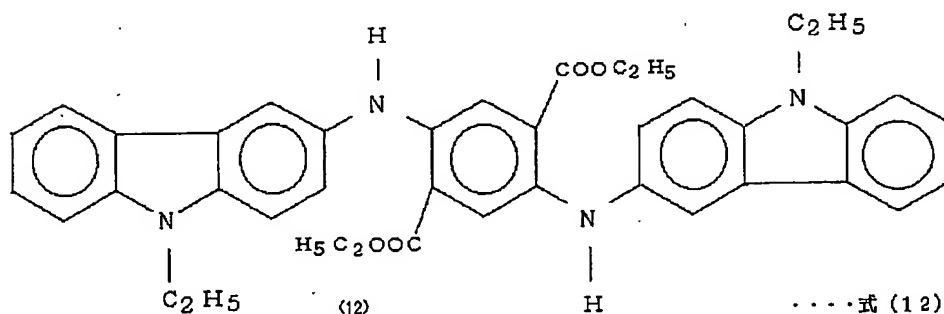
分液ロートを用いてクロロホルム抽出を3回行い、水洗浄を2回行った後硫酸ナトリウムを入れ水分の除去したものを濾過し、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を酢酸エチル、及び石油エーテルで順次に洗浄した後、真空乾燥して赤色粉体(13.1 g)を得た。

【0059】

この赤色粉体のIRチャートを図3に示し、NMRチャートを図4に示した。
この赤色粉体は以下の式(12)で示される。

【0060】

【化12】



【0061】

<閉環反応>

500 mlの3口フラスコに前記赤色粉体10.0 g (1.6×10^{-2} mol)を入れ、p-トルエンスルホン酸-水和物13.7 g (7.2×10^{-2} mol)を加え、更に、o-ジクロロベンゼン200 mlを加えた。シリコンオイルバスを用いて160℃まで加熱攪拌し、20時間反応した。反応終了後、エバポレーターを用いて濃縮環固させた。得られた固形物を5℃に冷却したメチルアルコール、アセトン、及び石油エーテルで順次に洗浄した後、真空乾燥して褐色粉体(9.4 g)を得た。精製する為に、1000 mlマイヤーにキシレン700 mlを入れ、得られた褐色粉体2.0 g、活性炭2.0 g加え、マントルヒーターを用いて3分間沸騰させ、熱時濾過した濾液をエバポレーターを用いて濃縮乾固させた。

【0062】

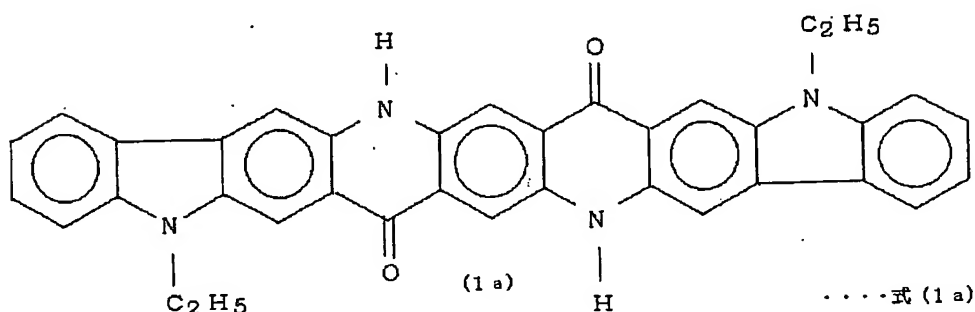
得られた固形分を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させてあずき色粉体を得た。このあずき色粉体のIRチャートは図5に示し、NMRチャートを図6に示した。

【0063】

このあずき色粉体は、以下の式(1a)で示される構造式を有する。

【0064】

【化13】



<発光特性(1)>

5mlのメスフラスコに、ポリビニルカルバゾール70mg、t-ブチルフェニルジフェニル-1,3,4-オキサジアゾール(PBD)29mg、及び前記あずき色粉体(化合物(1a))1mgを秤量し、ジクロロエタンを加えて5mlになるように白色有機蛍光化合物含有溶液を調製した。この白色有機蛍光化合物含有溶液は、超音波洗浄器((株)エスエヌディ製、US-2)で超音波を20分間照射することにより、十分に均一なものにされた。ITO基板(50×50mm、三容真空工業(株)製)をアセトンで10分間超音波洗浄した後に2-プロパノールで10分間超音波洗浄し、窒素でブローして乾燥させた。その後、UV照射装置((株)エム・ディ・エキシマ製、波長172nm)で30秒間UVを照射して洗浄した。スピコート(ミカサ(株)製、1H-D7)を用いて洗浄乾燥の終了したITO基板に、調製しておいた前記白色有機蛍光化合物含有溶液を滴下し、回転数1,500rpm、回転時間3秒にてスピコートして製膜した。製膜した基板を、50℃の恒温槽中で30分乾燥させた後に、真空蒸着装置(大亜真空技研(株)製、VDS-M2-46型)でアルミ合金(A1:Li=99:1重量比、(株)高純度化学研究所製)電極を、 4×10^{-6} Torr

で約150nmの厚みに蒸着し、EL素子を製作した。

【0065】

このEL素子は、(株)トプコン製のBM-7 Fastで徐々に電圧を上げながら輝度及び色度を測定した。その結果、電圧21V及び電流9.69mAで輝度が2,300Cd/m²、色度Xが0.33及び色度Yが0.33の結果が得られた。

【0066】

<発光特性(2)>

混合キシレンに前記白色有機蛍光化合物(1a)を10mg/Lの濃度になるように溶解して試料液を調製した。この試料液を、島津製作所製のF-4500型分光蛍光光度計に装填して、以下の条件にて蛍光スペクトルを測定した。得られた蛍光スペクトルを図7に示した。

【0067】

測定条件

測定モード	波長スキャン
励起波長	365nm
蛍光開始波長	400nm
蛍光終了波長	700nm
スキャンスピード	1200nm/分
励起側スリット	5.0nm
蛍光側スリット	5.0nm
ホトマル電圧	700V

図7から判るように、この実施例で得られた白色有機蛍光化合物は、400～00nm蛍光発光が見られ全領域をカバーしている。

【0068】

(実施例2)

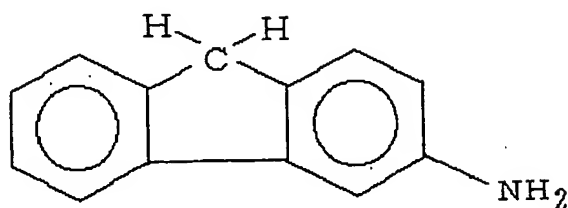
<脱水反応>

1000mlの3口フラスコに、下式(13)で示される3-アミノフローレン25.0g (1.4×10^{-1} mol)と、前記式(10)で示される化合物

15.7 g (7.0×10^{-2} mol) と加えて、更に酢酸、及びエチルアルコールを各々 200 ml 加えた。

【0069】

【化14】



(13)

・・・式 (13)

【0070】

シリコンオイルバスを用いて 120℃ まで加熱攪拌し、4 時間反応した。反応終了後、室温まで冷却し、氷の中に投入した。

【0071】

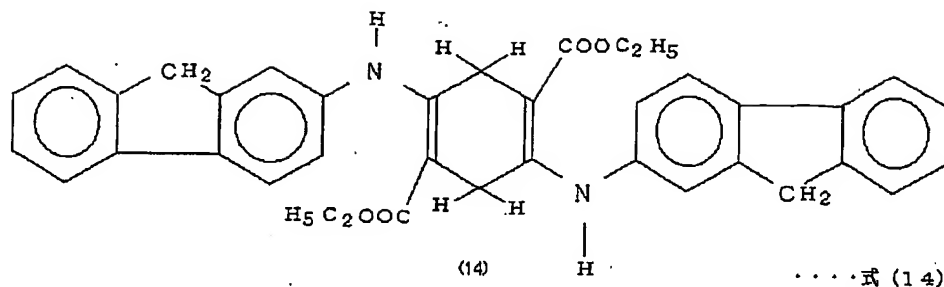
ガラスフィルターを用いて濾過した。フィルター内に残った固形物を 5℃ に冷却したメチルアルコール、及び石油エーテルで順次に洗浄した後、真空乾燥してオレンジ色粉体 (34.0 g) を得た。

【0072】

オレンジ色粉体の IR チャートを図 8 に示した。このオレンジ色粉体は以下の式 (14) で示される。

【0073】

【化15】



【0074】

<脱水素反応>

1000mlの3口フラスコに、前記脱水反応で得られたオレンジ色粉体25.0gを入れ、オージクロロベンゼン500mlを加えて、室温で95%硫酸1.0gを徐々に滴下し、30分間攪拌した後、シリコンオイルバスを用いて160℃までに加熱攪拌し、2時間反応した。反応終了後、室温まで冷却し、氷の中に投入した。

【0075】

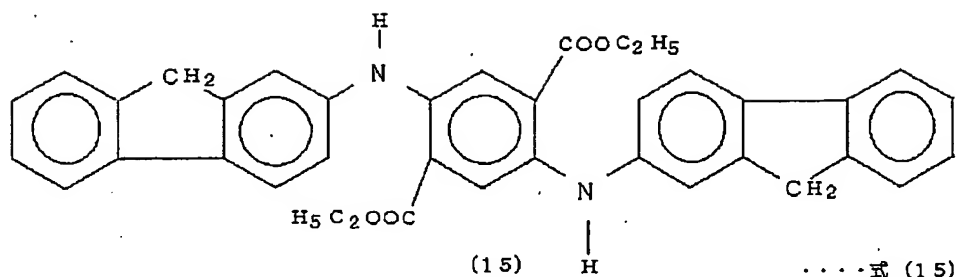
分液ロートを用いてクロロホルム抽出を3回行い、水洗浄を2回行った後に硫酸ナトリウムを入れて水分を除去してから濾過し、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を酢酸エチル、及び石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ赤色粉体(20.5g)を得た。

【0076】

この赤色粉体のIRチャートを図9に示した。この赤色粉体は、式(15)で示される化合物であった。

【0077】

【化16】



【0078】

<閉環反応>

500mlの3口フラスコに前記赤色粉体10.0g (1.7×10^{-2} mol)を入れ、p-トルエンスルホン酸-水和物15.3g (8.0×10^{-2} mol)を加え、更に、O-ジクロロベンゼン200mlを加えた。シリコンオイルバスを用いて160℃までに加熱攪拌し、20時間反応した。反応終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を5℃に冷却したメチルアルコール、アセトン、及び石油エーテルで順次に洗浄した後、真空乾燥させて褐色粉体(8.2g)を得た。精製する為に、1000mlマイヤーにキシレン700mlを入れ、得られた褐色粉体2.0g、及び活性炭2.0g加え、マントルヒーターを用いて3分間沸騰させ、熱時濾過した濾液をエバポレーターで濃縮乾固させた。

【0079】

得られた固形分を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥し、あずき色粉体を得た。

【0080】

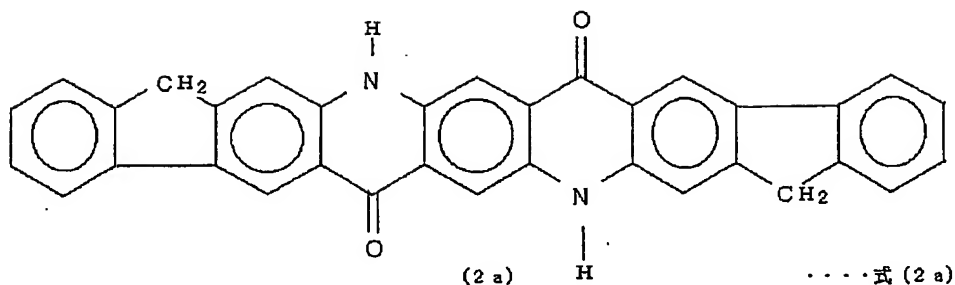
このアズキ色粉体のIRチャートを図10に示した。

【0081】

このアズキ色粉体の構造を以下の式(2a)にて示す。

【0082】

【化17】



【0083】

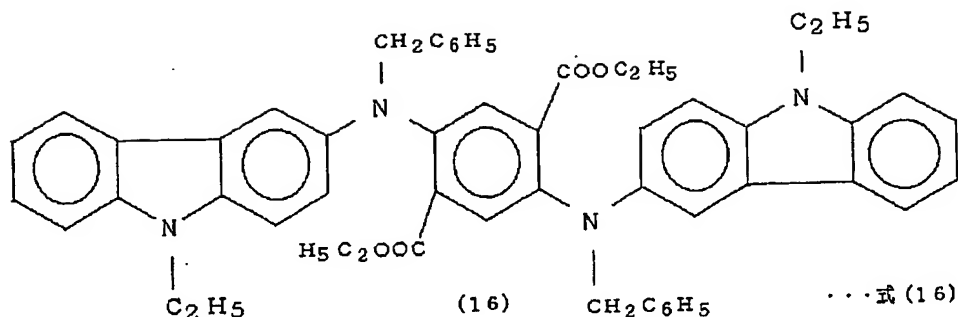
(実施例3)

<ベンジル化反応>

前記実施例1において製造されたのと同じ式(12)で示される構造を有する化合物10.0g (1.6×10^{-2} mol)を500mlの耐圧瓶に入れ、ベンジルブロミド17.1g (7.6×10^{-2} mol)を更に加え、次いでN,N-ジメチルホルムアミド(DMF)200mlを加えた。シリコーンオイルバスを用いて耐圧瓶内を150℃まで攪拌下に加熱し、20時間反応させた。反応終了後、室温にまで冷却し、エバポレータを用いて濃縮した後に、氷水に投入し、更に水酸化ナトリウムで中性にした。分液ロートを用いてクロロホルム抽出を3回行い、水洗浄を2回行った。次いで、硫酸ナトリウムを入れて水分を除去し、濾過し、エバポレータを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後に、真空乾燥して茶褐色粉体を得た。この茶褐色粉体のIRチャートを図11に示した。この茶褐色粉体は式(16)で示される構造を有する。

【0084】

【化18】



【0085】

<閉環反応>

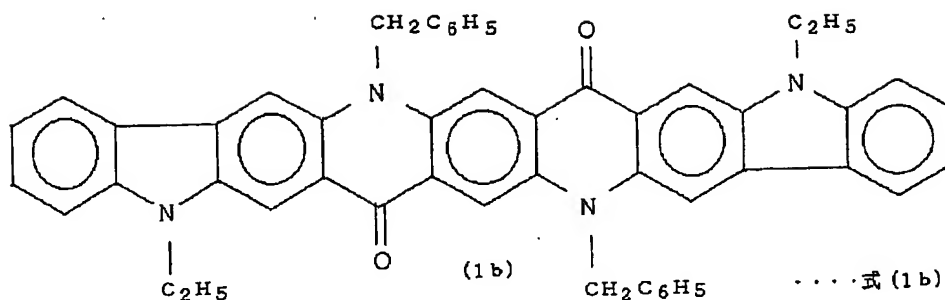
500mlの三口フラスコに、上記式(16)で示される化合物5.0g (6.1×10^{-3} mol)を入れ、p-トルエンスルホン酸一水和物5.2g (7×10^{-2} mol)を加え、更にo-ジクロロベンゼン200mlを加えた。シリコンオイルバスで160℃にまで加熱攪拌し、20時間反応させた。反応終了後、エバポレータを用いて濃縮乾固した。得られた固形物を5℃に冷却したメチルアルコール、アセトン及び石油エーテルで洗浄した後に、真空乾燥させて褐色固体を得た。

【0086】

ソクスレー抽出装置を用いて前記褐色固体1.0gをキシレン250mlで24時間かけて抽出した。抽出終了後にエバポレータを用いて濃縮乾固し、得られた固形物を石油エーテルで洗浄し、真空乾燥し、茶色粉体を得た。この茶色粉体のIRチャートを図12に示した。この褐色固体は式(1b)で示す構造を有する化合物であった。

【0087】

【化19】



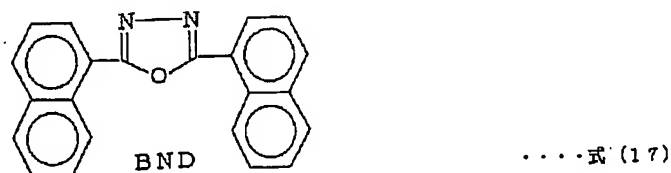
【0088】

<発光特性(3)>

前記実施例1の<発光特性(1)>におけるように、5mlのメスフラスコに、ポリビニルカルバゾール70mg、t-ブチルフェニル-ジフェニル-1, 3, 4-オキサジアゾール29mg、及び前記あずき色粉体(化合物(1a)) 1mgを秤量し、ジクロロエタンを加えて5mlになるように白色有機蛍光化合物含有溶液を調製する代わりに、5mlのメスフラスコに、ポリビニルカルバゾール70mg、式(17)で示される構造を有するBND 29.7mg及び前記式(1b)で示される白色有機蛍光化合物0.3mgをジクロロエタンを加えて5mlになるように白色有機蛍光化合物含有溶液を調製した。この白色有機蛍光化合物含有溶液を用いて、前記実施例1の<発光特性(1)>におけるのと同様にしてEL素子を製作し、このEL素子につき(株)トプコン製の分光放射計SR-3にて輝度及び色度を測定した。

【0089】

【化20】



【0090】

その結果、電圧21V及び電流36.8mAで輝度が2400Cd/m²、色

度Xが0.34及び色度Yが0.35の結果が得られた。また、この分光放射計でこの白色有機蛍光化合物の分光放射輝度グラフを図13に示した。この分光放射輝度グラフにより、肉眼では十分に白色発光していたと認めることができる。

【0091】

<発光特性(4)>

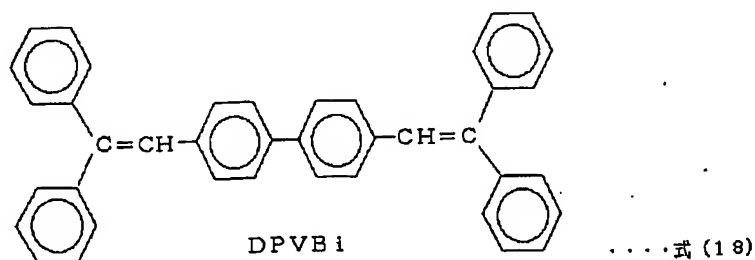
ITO基板(50×50mm、三容真空工業(株)製)をアセトンで10分間かけて超音波洗浄した後に2-プロパノールで10分間超音波洗浄し、窒素でブローして乾燥させた。その後に、UV照射装置((株)エム・ディ・エキシマ製、波長172nm)で30秒間UVを照射してITO基板の洗浄を完了した。

【0092】

洗浄されたITO基板を真空蒸着装置(大亜真空技研(株)製、UDS-M2-46型)にセットし、 4×10^{-6} torr以下の減圧下にN、N'-ジフェニル-N,N'-ジ(m-トリル)-ベンジジン(TPD)を68nmの厚みに蒸着し、次いで、前記白色有機蛍光化合物(1b)を0.6nmの厚みに蒸着し、更に、以下の式(18)で示される構造を有するDPVBiを36nmの厚みに蒸着し、最後にトリス(8-キノリナート)・アルミニウム(Alq3)を40nmの蒸着し、最後にアルミ合金製電極(Al:Li=99:1重量比、(株)高純度化学研究所製)を150nmの厚みに蒸着することにより、EL素子を製作した。

【0093】

【化21】



【0094】

このEL素子につき、前記発光特性(3)と同様にして輝度及び色度を測定した。

【0095】

その結果、電圧17V及び電流21.8mAで輝度が4500Cd/m²、色度Xが0.32及び色度Yが0.35の結果が得られた。また、この分光放射計でこの白色有機蛍光化合物の分光放射輝度グラフを図14に示した。この分光放射輝度グラフにより、肉眼では十分に白色発光していたと認めることができる。

【0096】

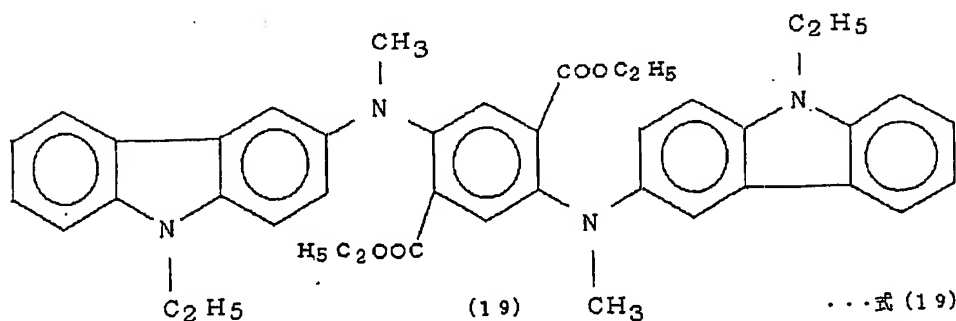
(実施例4)

<メチル化反応>

前記実施例1において製造されたのと同じ式(12)で示される構造を有する化合物10.0g (1.6×10^{-2} mol)を500mlの耐圧瓶に入れ、ヨードメタン10.8g (7.6×10^{-2} mol)を更に加え、次いでN,N-ジメチルホルムアミド(DMF)200mlを加えた。シリコンオイルバスを用いて耐圧瓶内を150℃まで攪拌下に加熱し、20時間反応させた。反応終了後、室温にまで冷却し、エバポレータを用いて濃縮した後に、氷水に投入し、更に水酸化ナトリウムで中性にした。分液ロートを用いてクロロホルム抽出を3回行い、水洗浄を2回行った。次いで、硫酸ナトリウムを入れて水分を除去し、濾過し、エバポレータを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後に、真空乾燥して茶褐色粉体を得た。この茶褐色粉体のIRチャートを図15に示した。この茶褐色粉体は式(19)で示される構造を有する。

【0097】

【化22】



【0098】

<閉環反応>

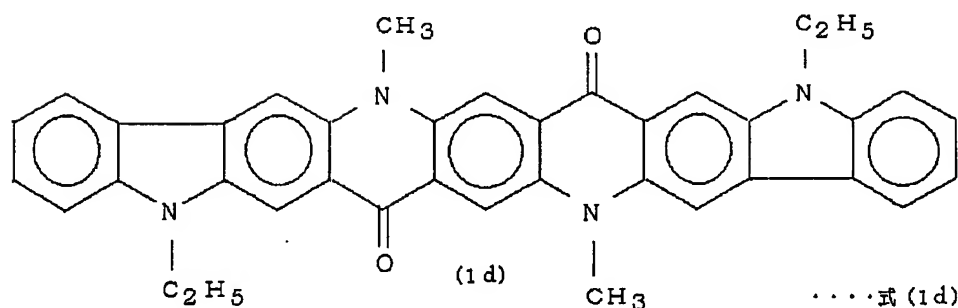
500 ml の三口フラスコに、上記式 (19) で示される化合物 5.0 g (7.5×10^{-3} mol) を入れ、p-トルエンスルホン酸一水和物 8.0 g (4.2×10^{-2} mol) を加え、更にo-ジクロロベンゼン 200 ml を加えた。シリコンオイルバスで 160℃ にまで加熱攪拌し、20 時間反応させた。反応終了後、エバポレータを用いて濃縮乾固した。得られた固形物を 5℃ に冷却したメチルアルコール、アセトン及び石油エーテルで洗浄した後に、真空乾燥させて褐色固体を得た。

【0099】

ソクスレー抽出装置を用いて前記褐色固体 1.0 g をキシレン 250 ml で 24 時間かけて抽出した。抽出終了後にエバポレータを用いて濃縮乾固し、得られた固形物を石油エーテルで洗浄し、真空乾燥し、茶色粉体を得た。この茶色粉体の IR チャートを図 16 に示した。この褐色固体は式 (1d) で示す構造を有する化合物であった。

【0100】

【化 23】



【0101】

<発光特性(5)>

前記<発光特性(4)>におけるのと同様にして、ITO 基板上に、TPD を 71 nm の厚みに蒸着し、次いで、前記白色有機蛍光化合物 (1d) を 0.6 nm の厚みに蒸着し、更に、DPVBi を 40 nm の厚みに蒸着し、最後にトリス(8-キノリナート) アルミニウム (Alq3) を 41 nm の厚みに蒸着し、最後

にアルミ合金製電極 (Al:Li=99:1 重量比、(株)高純度化学研究所製) を 150 nm の厚みに蒸着することにより、EL 素子を製作した。

【0102】

この EL 素子につき、前記発光特性(3)と同様にして輝度及び色度を測定した。

【0103】

その結果、電圧 16 V 及び電流 17.5 mA で輝度が 7000 Cd/m^2 、色度 X が 0.35 及び色度 Y が 0.34 の結果が得られた。また、この分光放射計でこの白色有機蛍光化合物の分光放射輝度グラフを図 17 に示した。この分光放射輝度グラフにより、肉眼では十分に白色発光していたと認めることができる。

【0104】

(実施例 5)

<エチル化反応>

前記実施例 1 において製造されたのと同じ式 (12) で示される構造を有する化合物 10.0 g ($1.6 \times 10^{-2} \text{ mol}$) を 500 ml の耐圧瓶に入れ、ヨードエタン ($\text{C}_2\text{H}_5\text{I}$) 10.8 g ($6.9 \times 10^{-2} \text{ mol}$) を加え、更に、N, N-ジメチルホルムアミド (DMF) を 200 ml 加えた。シリコンオイルバスを用いて 150℃ まで加熱攪拌し、20 時間反応した。反応終了後、室温まで冷却し、エバポレーターを用いて濃縮した後、氷水に投入し水酸化ナトリウムで中性にした。分液ロートを用いてクロロホルム抽出を 3 回行い、水洗浄を 2 回行った後、硫酸ナトリウムを入れ水分を除去したものを濾過し、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、茶褐色粉末を得た。この茶褐色粉末の IR チャートを図 18 に示した。

【0105】

<閉環反応>

500 ml の 3 口フラスコに前記エチル化反応生成物 5.0 g ($8.3 \times 10^{-3} \text{ mol}$) を入れ、p-トルエンスルホン酸一水和物 8.0 g ($4.2 \times 10^{-2} \text{ mol}$) を加え、更に、o-ジクロロベンゼン 200 ml を加えた。シリコンオイルバスを用いて 160℃ まで加熱攪拌し、20 時間反応した。反応終了後、エバポレー

ターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を5℃に冷却したメチルアルコール、アセトン、石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、褐色粉体を得た。この褐色粉体のIRチャートを図19に示した。

【0106】

<精製>

ソックスレー装置を用いて上記閉環反応物1.0gを入れ、キシレン250mlを加え、シリコンオイルバスを用いて185℃まで加熱し、24時間抽出した。終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、茶色粉体を得た。

【0107】

(実施例6)

<ブチル化反応>

前記実施例1において製造されたのと同じ式(12)で示される構造を有する化合物10.0g (1.6×10^{-2} mol)を500mlの耐圧瓶に入れ、n-ブチルヨード(C_4H_9I)10.8g (7.6×10^{-2} mol)を加え、更に、N,N-ジメチルホルムアミド(DMF)200mlを加えた。シリコンオイルバスを用いて150℃まで加熱攪拌し、20時間反応した。反応終了後、室温まで冷却し、エバポレーターを用いて濃縮した後、氷水に投入し水酸化ナトリウムで中性にした。分液ロートを用いてクロロホルム抽出を3回行い、水洗浄を2回行った後、硫酸ナトリウムを入れ水分を除去したものを濾過し、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、茶褐色粉体を得た。この茶褐色粉体のIRチャートを図20に示した。

【0108】

<閉環反応>

500mlの3口フラスコに前記ブチル化反応生成物5.0g (7.5×10^{-3} mol)を入れ、p-トルエンスルホン酸一水和物7.2g (3.7×10^{-2} mol)を加え、更に、O-ジクロロベンゼン200mlを加えた。シリコンオイルバスを用いて160℃まで加熱攪拌し、20時間反応した。反応終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を5℃に冷却したメチルアルコール

ル、アセトン、石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、褐色粉体を得た。この褐色粉体のIRチャートを図21に示した。

【0109】

<精製>

ソックスレー装置を用いて上記閉環反応物1.0gを入れ、キシレン250mlを加え、シリコンオイルバスを用いて185℃まで加熱し、24時間抽出した。終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、茶色粉体を得た。

【0110】

(実施例7)

<ヘキシル化反応>

前記実施例1において製造されたのと同じ式(12)で示される構造を有する化合物5.0g ($8.0 \times 10^{-3} \text{ mol}$)を500mlの耐圧瓶に入れ、ヨウ化ヘキシル($\text{C}_6\text{H}_{13}\text{I}$)12.9g ($4.5 \times 10^{-2} \text{ mol}$)を加え、更に、N,N-ジメチルホルムアミド(DMF)200mlを加えた。シリコンオイルバスを用いて150℃まで加熱攪拌し、20時間反応した。反応終了後、室温まで冷却し、エバポレーターを用いて濃縮した後、氷水に投入し水酸化ナトリウムで中性にした。分液ロートを用いてクロロホルム抽出を3回行い、水洗浄を2回行った後、硫酸ナトリウムを入れ水分を除去したものを濾過し、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、茶褐色粉体を得た。この茶褐色粉体のIRチャートを図22に示した。

【0111】

<閉環反応>

500mlの3口フラスコに前記ヘキシル化反応生成物5.0g ($5.8 \times 10^{-3} \text{ mol}$)を入れ、p-トルエンスルホン酸一水和物6.6g ($3.5 \times 10^{-2} \text{ mol}$)を加え、更に、o-ジクロロベンゼン200mlを加えた。シリコンオイルバスを用いて160℃まで加熱攪拌し、20時間反応した。反応終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を5℃に冷却したメチルアルコール、アセトン、石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ褐色粉体を得た。こ

の褐色粉体のIRチャートを図23に示した。

【0112】

<精製>

ソックスレー装置を用いて上記閉環反応物1.0gを入れ、キシレン250mlを加え、シリコンオイルバスを用いて185℃まで加熱し、24時間抽出した。終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ茶色粉体を得た。

【0113】

(実施例8)

<ベンジル化反応>

前記実施例1において製造されたのと同じ式(12)で示される構造を有する化合物10.0g (1.6×10^{-2} mol)を500mlの耐圧瓶に入れ、ベンジルブロミド($C_6H_5CH_2Br$)17.1g (7.6×10^{-2} mol)を加え、更に、N,N-ジメチルホルムアミド(DMF)200mlを加えた。シリコンオイルバスを用いて150℃まで加熱攪拌し、20時間反応した。反応終了後、室温まで冷却し、エバポレーターを用いて濃縮した後、氷水に投入し水酸化ナトリウムで中性にした。分液ロートを用いてクロロホルム抽出を3回行い、水洗浄を2回行った後、硫酸ナトリウムを入れ水分を除去したものを濾過し、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、茶褐色粉体を得た。この茶褐色粉体のIRチャートを図24に示した。

【0114】

<閉環反応>

500mlの3口フラスコにベンジル化反応生成物5.0g (6.9×10^{-3} mol)を入れ、p-トルエンスルホン酸一水和物5.2g (2.7×10^{-2} mol)を加え、更に、o-ジクロロベンゼン200mlを加えた。シリコンオイルバスを用いて160℃まで加熱攪拌し、20時間反応した。反応終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を5℃に冷却したメチルアルコール、アセトン、石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ褐色粉体を得た。この褐

色粉体のIRチャートを図25に示した。

【0115】

(実施例9)

<メチルベンジル化(トリル化)反応>

前記実施例1において製造されたのと同じ式(12)で示される構造を有する化合物10.0g (1.6×10^{-2} mol)を500mlの耐圧瓶に入れ、 α -クロロ-p-キシレン($\text{CH}_3\text{C}_6\text{H}_4\text{CH}_2\text{Cl}$)15.8g (1.1×10^{-1} mol)を加え、更に、N,N-ジメチルホルムアミド(DMF)を200ml加えた。シリコンオイルバスを用いて150℃まで加熱攪拌し、20時間反応した。反応終了後、室温まで冷却し、エバポレーターを用いて濃縮した後、氷水に投入し水酸化ナトリウムで中性にした。分液ロートを用いてクロロホルム抽出を3回行い、水洗浄を2回行った後、硫酸ナトリウムを入れ水分を除去したものを濾過し、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、茶褐色粉体を得た。この茶褐色粉体のIRチャートを図26に示した。

【0116】

<閉環反応>

500mlの3口フラスコにメチルベンジル化反応生成物5.0g (5.4×10^{-3} mol)を入れ、p-トルエンスルホン酸一水和物8.0g (4.2×10^{-2} mol)を加え、更に、o-ジクロロベンゼン200ml加えた。シリコンオイルバスを用いて160℃まで加熱攪拌し、20時間反応した。反応終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を5℃に冷却したメチルアルコール、アセトン、石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ褐色粉体を得た。この褐色粉体のIRチャートを図27に示した。

【0117】

<精製>

ソックスレー装置を用いて上記閉環反応物1.0gを入れ、キシレン250mlを加え、シリコンオイルバスを用いて185℃まで加熱し、24時間抽出した。終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エ

ーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、茶色粉体を得た。

【0118】

<発光特性(6)>

発光特性(4)において、「TPDを68nmの厚みに蒸着してTPD層を形成」する代わりに45nmの α -NPD層を形成し、「白色有機蛍光化合物(1b)を0.6nmの厚みに蒸着し、更に、以下の式(18)で示される構造を有するDPVBiを36nmの厚みに蒸着」する代わりに前記白色発光化合物(1c)4.4%をDPVBi中にドーピングしてなる発光層18nmを形成し、及び「Alq3層40nmを蒸着」する代わりにAlq3層21nmをこの順に積層した外は、前記発光特性(4)に記載されたのと同様のEL素子を製作した。

【0119】

前記発光特性(3)におけるのと同様に発光特性を測定したところ、電圧18V及び電流30.9mAで輝度が 10720Cd/m^2 、色度Xが0.35及び色度Yが0.39の結果が得られた。

【0120】

<発光特性(7)>

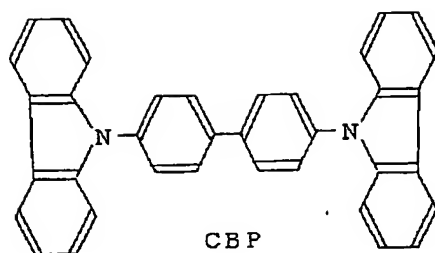
α -NPD層46nm、前記白色発光化合物(1c)2.9%を式(20)で示される構造を有するCBP中にドーピングしてなる層31nm及びAlq3層19nmをこの順に積層した外は、前記発光特性(4)に記載されたのと同様のEL素子を製作した。

【0121】

前記発光特性(3)におけるのと同様に発光特性を測定したところ、電圧17V及び電流36.1mAで輝度が 10120Cd/m^2 、色度Xが0.32及び色度Yが0.35の結果が得られた。

【0122】

【化 24】



...式(20)

【0123】

(実施例10)

<ジメチルベンジル化(キシル化)反応>

前記実施例1において製造されたのと同じ式(12)で示される構造を有する化合物10.0g (1.6×10^{-2} mol)を500mlの耐圧瓶に入れ、2,4-ジメチルベンジルクロライド($\text{CH}_3\text{C}_6\text{H}_3\text{CH}_3\text{CH}_2\text{Cl}$)15.8g (1.0×10^{-1} mol)を加え、更に、N,N-ジメチルホルムアミド(DMF)200mlを加えた。シリコンオイルバスを用いて150℃まで加熱攪拌し、20時間反応した。反応終了後、室温まで冷却し、エバポレーターを用いて濃縮した後、氷水に投入し水酸化ナトリウムで中性にした。分液ロートを用いてクロロホルム抽出を3回行い、水洗浄を2回行った後、硫酸ナトリウムを入れ水分を除去したものを濾過し、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、茶褐色粉体を得た。この茶褐色粉体のIRチャートを図28に示した。

【0124】

<開環反応>

500mlの3口フラスコに前記ジメチルベンジル化反応生成物5.0g (6.3×10^{-3} mol)を入れ、p-トルエンスルホン酸一水和物6.0g (3.2×10^{-2} mol)を加え、更に、o-ジクロロベンゼン200ml加えた。シリコンオイルバスを用いて160℃まで加熱攪拌し、20時間反応した。反応終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を5℃に冷却したメチルアルコール、アセトン、石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ褐色粉体を得た。この褐色粉体のIRチャートを図29に示した。

【0125】

＜精製＞

ソックスレー装置を用いて上記閉環反応物1.0 gを入れ、キシレン250 mlを加え、シリコンオイルバスを用いて185℃まで加熱し、24時間抽出した。終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、茶色粉体を得た。

【0126】

(実施例11)

＜ナフチル化反応＞

前記実施例1において製造されたのと同じ式(12)で示される構造を有する化合物5.0 g (8.0×10^{-3} mol)を500 mlの耐圧瓶に入れ、1-クロロメチルナフタレイン ($C_{10}H_7CH_2Cl$) 9.6 g (5.4×10^{-2} mol)を加え、更に、N, N-ジメチルホルムアミド (DMF) 200 mlを加えた。シリコンオイルバスを用いて150℃まで加熱攪拌し、20時間反応した。反応終了後、室温まで冷却し、エバポレーターを用いて濃縮した後、氷水に投入し水酸化ナトリウムで中性にした。分液ロートを用いてクロロホルム抽出を3回行い、水洗浄を2回行った後、硫酸ナトリウムを入れ水分を除去したものを濾過し、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、茶褐色粉体を得た。この茶褐色粉体のIRチャートを図30に示した。

【0127】

＜開環反応＞

500 mlの3口フラスコにナフチル化反応生成物5.0 g (6.0×10^{-3} mol)を入れ、p-トルエンスルホン酸一水和物6.9 g (3.6×10^{-2} mol)を加え、更に、o-ジクロロベンゼン200 ml加えた。シリコンオイルバスを用いて160℃まで加熱攪拌し、20時間反応した。反応終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を5℃に冷却したメチルアルコール、アセトン、石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、褐色粉体を得た。この褐色粉体のIRチャートを図31に示した。

【0128】

＜精製＞

ソックスレー装置を用いて上記閉環反応物 1.0 g を入れ、キシレン 250 ml を加え、シリコンオイルバスを用いて 185℃ まで加熱し、24 時間抽出した。終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、茶褐色粉体を得た。

【0129】

(実施例 12)

＜アントラセン化反応＞

前記実施例 1 において製造されたのと同じ式 (12) で示される構造を有する化合物 5.0 g (8.0×10^{-3} mol) を 500 ml の耐圧瓶に入れ、9-クロロメチルアントラセン ($C_{14}H_7CH_2Cl$) 8.6 g (5.4×10^{-2} mol) を加え、更に、N, N-ジメチルホルムアミド (DMF) 200 ml を加えた。シリコンオイルバスを用いて 150℃ まで加熱攪拌し、20 時間反応した。反応終了後、室温まで冷却し、エバポレーターを用いて濃縮した後、氷水に投入し水酸化ナトリウムで中性にした。分液ロートを用いてクロロホルム抽出を 3 回行い、水洗浄を 2 回行った後、硫酸ナトリウムを入れ水分を除去したものを濾過し、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、茶褐色粉体を得た。この茶褐色粉体の IR チャートを図 32 に示した。

【0130】

＜閉環反応＞

500 ml の 3 口フラスコにアントラセン化反応生成物 5.0 g (5.3×10^{-3} mol) を入れ、p-トルエンスルホン酸一水和物 5.1 g (2.6×10^{-2} mol) を加え、更に、o-ジクロロベンゼン 200 ml を加えた。シリコンオイルバスを用いて 160℃ まで加熱攪拌し、20 時間反応した。反応終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を 5℃ に冷却したメチルアルコール、アセトン、石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ褐色粉体を得た。この褐色粉体の IR チャートを図 33 に示した。

【0131】

<精製>

ソックスレー装置を用いて上記閉環反応物1.0gを入れ、キシレン250mlを加え、シリコンオイルバスを用いて185℃まで加熱し、24時間抽出した。終了後、エバポレーターを用いて濃縮乾固させた。得られた固形物を石油エーテルで洗浄した後、真空乾燥させ、茶色粉体を得た。

【0132】

【発明の効果】

この発明によると、単一物質でありながら400～700nmの蛍光発光領域を有し、輝度が2000Cd/m²以上である白色発光可能な白色有機蛍光化合物を提供することができ、この白色有機蛍光化合物を利用して有機EL素子、ディスプレイ、照明装置等により白色に発光させることができる。

【0133】

又、この白色有機蛍光化合物は、プリズムを用いて分光することにより青発光、赤発光及び緑発光が可能な発光素子にすることもでき、さらに、カラーフィルターを用いてフルカラーの表示をすることもでき、LCDのバックライト等にも使用されることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

図1は、有機EL素子の一例を示す説明図である。

【図2】

図2は、実施例1における、ジメチル1,4-シクロヘキサジエン-2,5-ジカルボキシレートと3-アミノ-9-エチルカルバゾールとを脱水反応させて得られる化合物を示すIRチャートである。

【図3】

図3は、実施例1における、脱水反応物を脱水素反応させて得られた化合物を示すIRチャートである。

【図4】

図4は、実施例1における、脱水反応物を脱水素反応させて得られた化合物を

示すNMRチャートである。

【図5】

図5は、実施例1における、脱水素反応生成物を閉環反応させて得られる白色有機蛍光化合物を示すIRチャートである。

【図6】

図6は、実施例1における白色有機蛍光化合物を示すNMRチャートである。

【図7】

図7は、実施例1における白色有機蛍光化合物の蛍光スペクトルを示すグラフである。

【図8】

図8は、実施例2における、ジメチル1、4-シクロヘキサジエン-2、5-ジカルボキシレイトと2-アミノフローレンとを脱水反応させて得られる化合物を示すIRチャートである。

【図9】

図9は、実施例2における、脱水反応物を脱水素反応させて得られた化合物を示すIRチャートである。

【図10】

図10は、実施例2における、脱水素反応生成物を閉環反応させて得られた白色有機蛍光化合物を示すIRチャートである。

【図11】

図11は、式(16)の構造を有する化合物のIRチャートである。

【図12】

図12は、式(1b)の構造を有する化合物のIRチャートである。

【図13】

図13は、式(1b)の構造を有する化合物を利用した有機EL素子による発光特性を示す分光放射輝度グラフである。

【図14】

図14は、式(1b)の構造を有する化合物を利用した有機EL素子による発光特性を示す分光放射輝度グラフである。

【図 1 5】

図 1 5 は、式 (1 9) の構造を有する化合物の I R チャートである。

【図 1 6】

図 1 6 は、式 (1 d) の構造を有する化合物の I R チャートである。

【図 1 7】

図 1 7 は式 (1 d) の構造を有する化合物を利用した有機 E L 素子による発光特性を示す分光放射輝度グラフである。

【図 1 8】

図 1 8 は、実施例 5 の茶褐色粉体の I R チャートである。

【図 1 9】

図 1 9 は、実施例 5 の褐色粉体の I R チャートである。

【図 2 0】

図 2 0 は、実施例 6 の茶褐色粉体の I R チャートである。

【図 2 1】

図 2 1 は、実施例 6 の褐色粉体の I R チャートである。

【図 2 2】

図 2 2 は、実施例 7 の茶褐色粉体の I R チャートである。

【図 2 3】

図 3 は、実施例 7 の褐色粉体の I R チャートである。

【図 2 4】

図 2 4 は、実施例 8 の茶褐色粉体の I R チャートである。

【図 2 5】

図 2 5 は、実施例 8 の褐色粉体の I R チャートである。

【図 2 6】

図 2 6 は、実施例 9 の茶褐色粉体の I R チャートである。

【図 2 7】

図 2 7 は、実施例 9 の褐色粉体の I R チャートである。

【図 2 8】

図 2 8 は、実施例 1 0 の茶褐色粉体の I R チャートである。

【図 2 9】

図 2 9 は、実施例 1 0 の褐色粉体の I R チャートである。

【図 3 0】

図 3 0 は、実施例 1 1 の茶褐色粉体の I R チャートである。

【図 3 1】

図 3 1 は、実施例 1 1 の褐色粉体の I R チャートである。

【図 3 2】

図 3 2 は、実施例 1 2 の茶褐色粉体の I R チャートである。

【図 3 3】

図 3 3 は、実施例 1 2 の褐色粉体の I R チャートである。

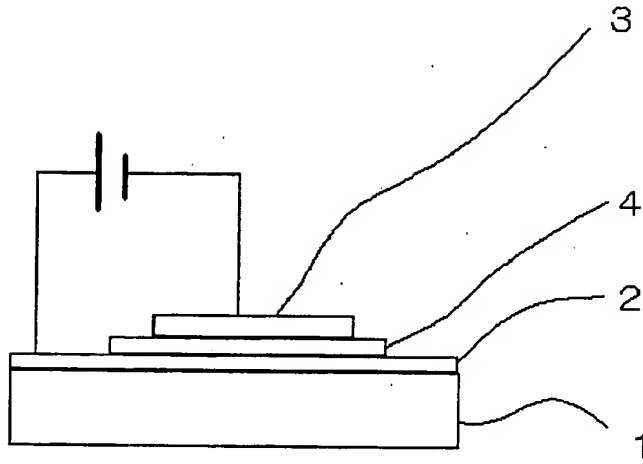
【符号の説明】

1 . . . 基板、 2 . . . 陽極、 3 . . . 陰極、 4 . . . ホール輸送層、 5 . . .
発光層。

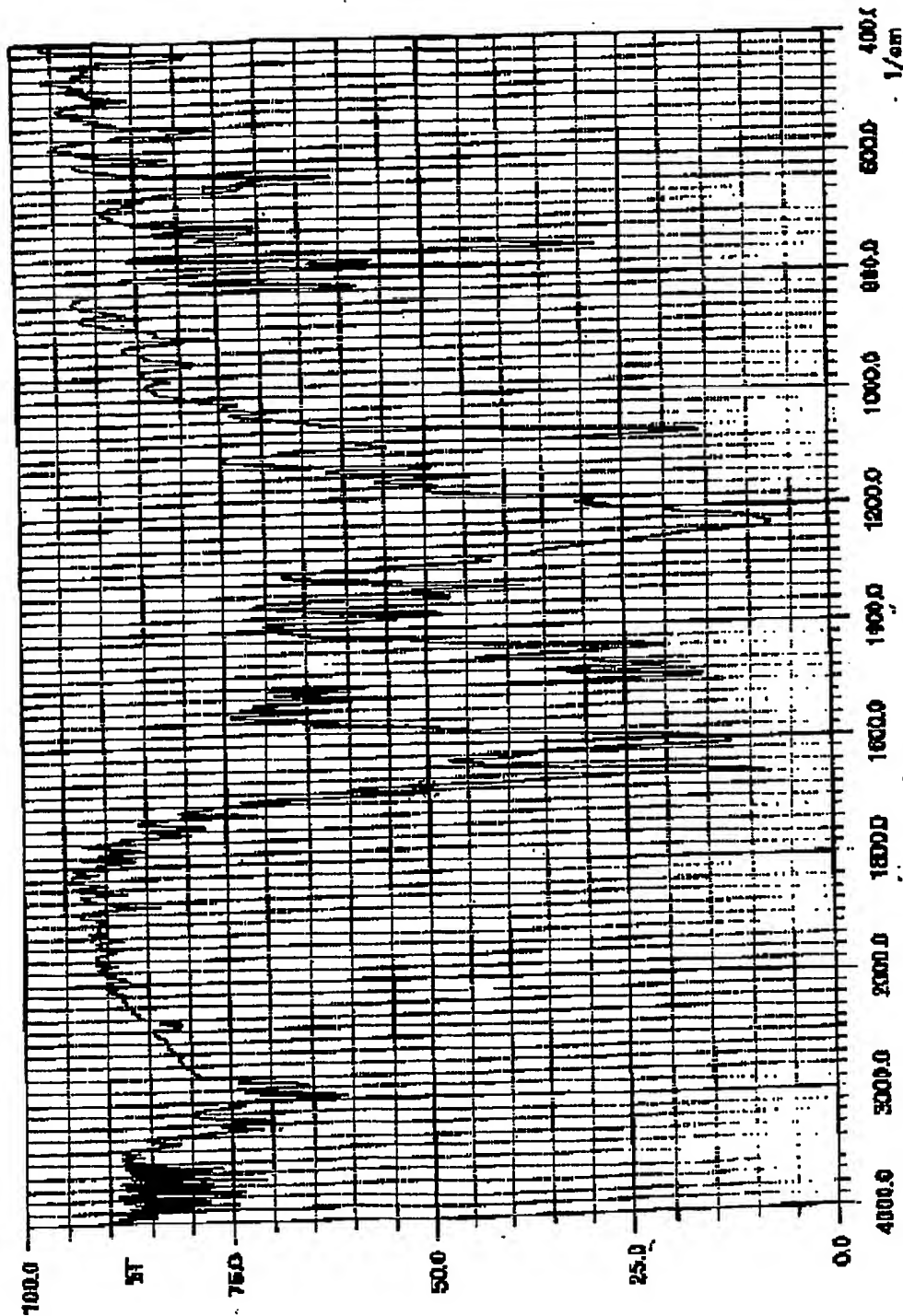
【書類名】

図面

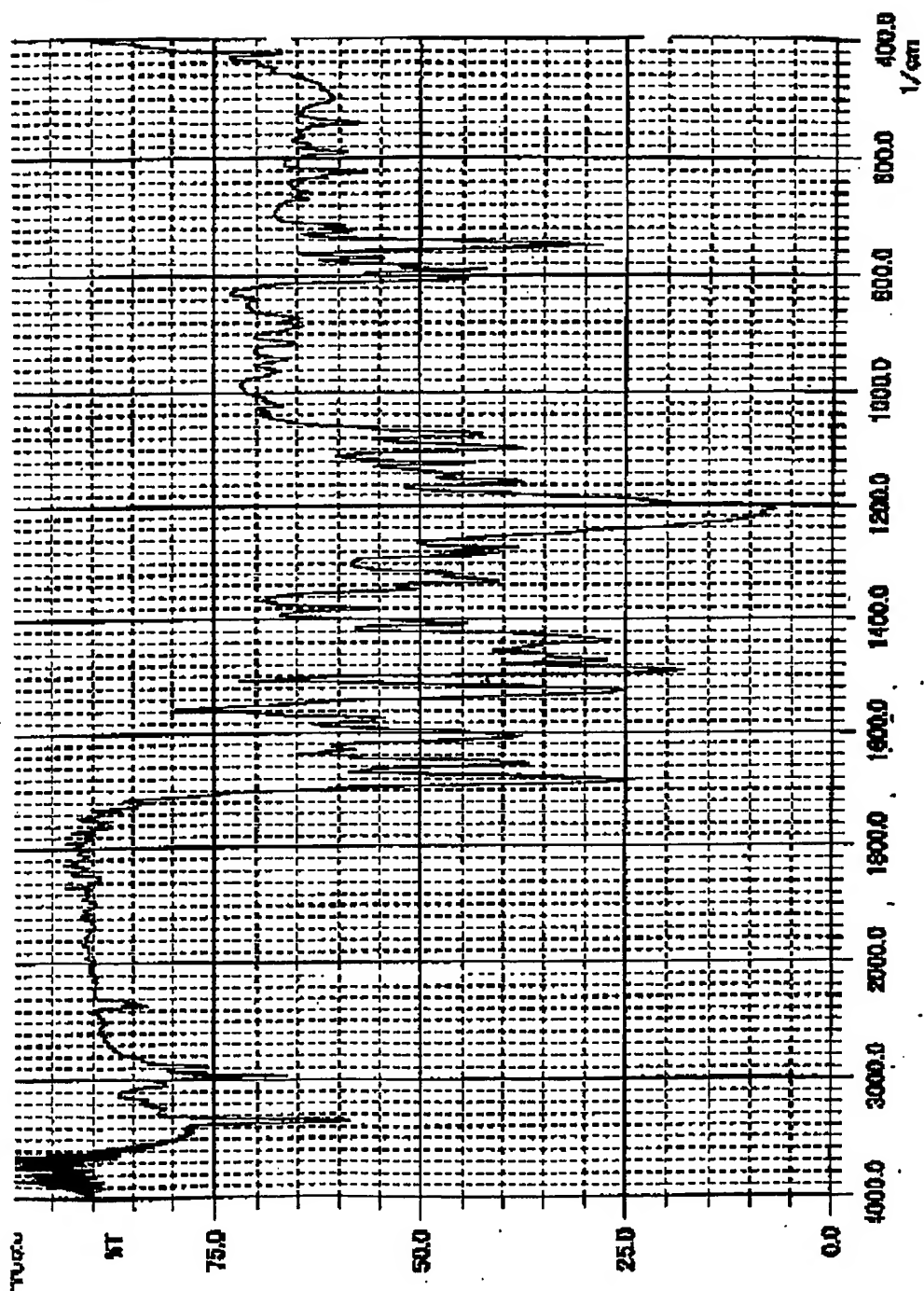
【図 1】

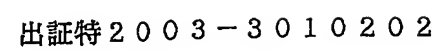


【図2】

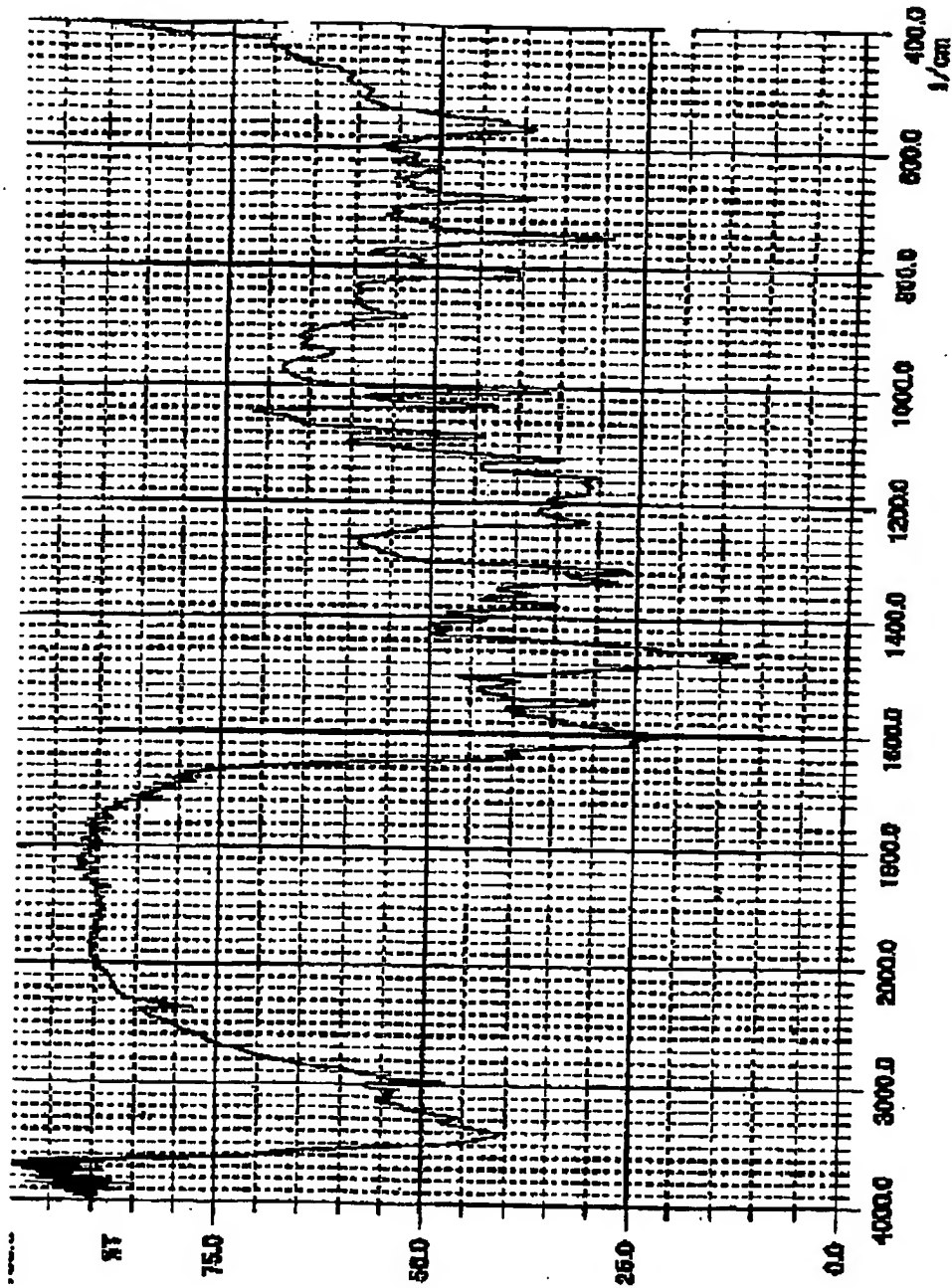


【図3】

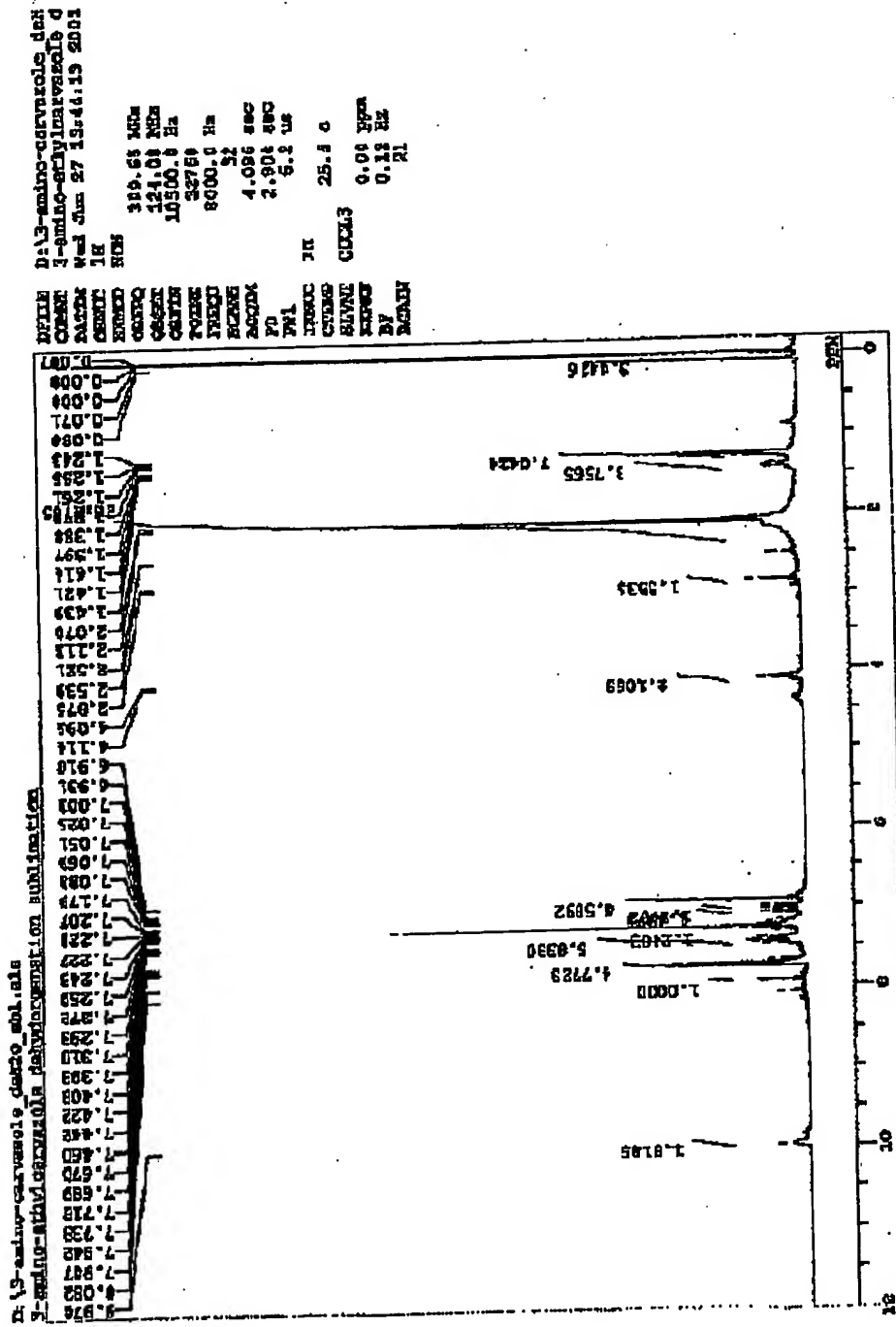




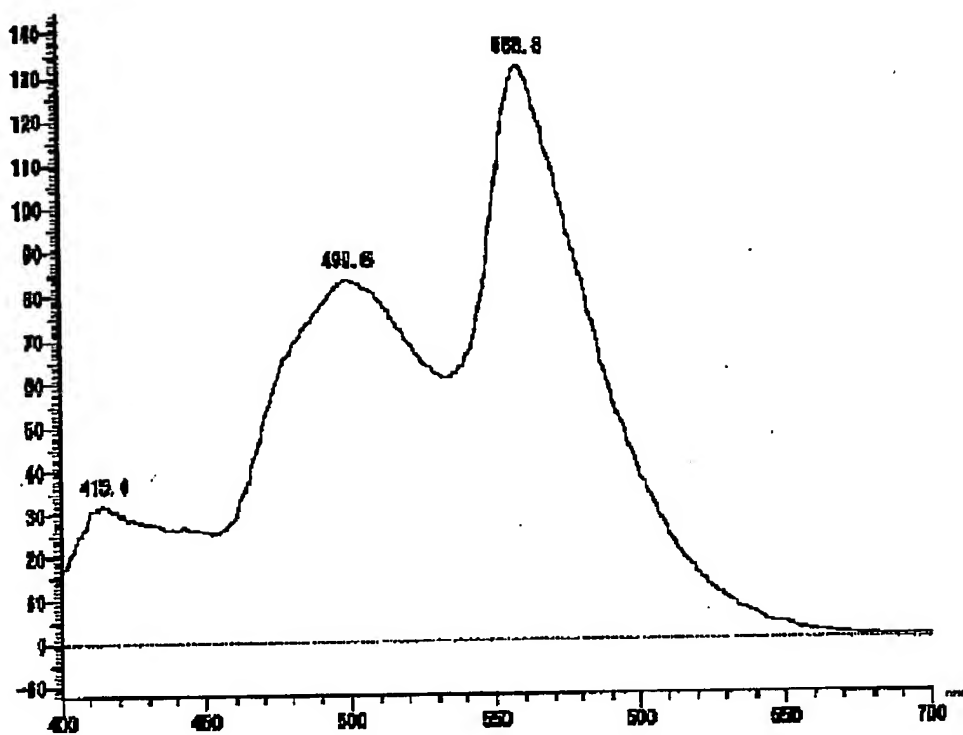
【図5】



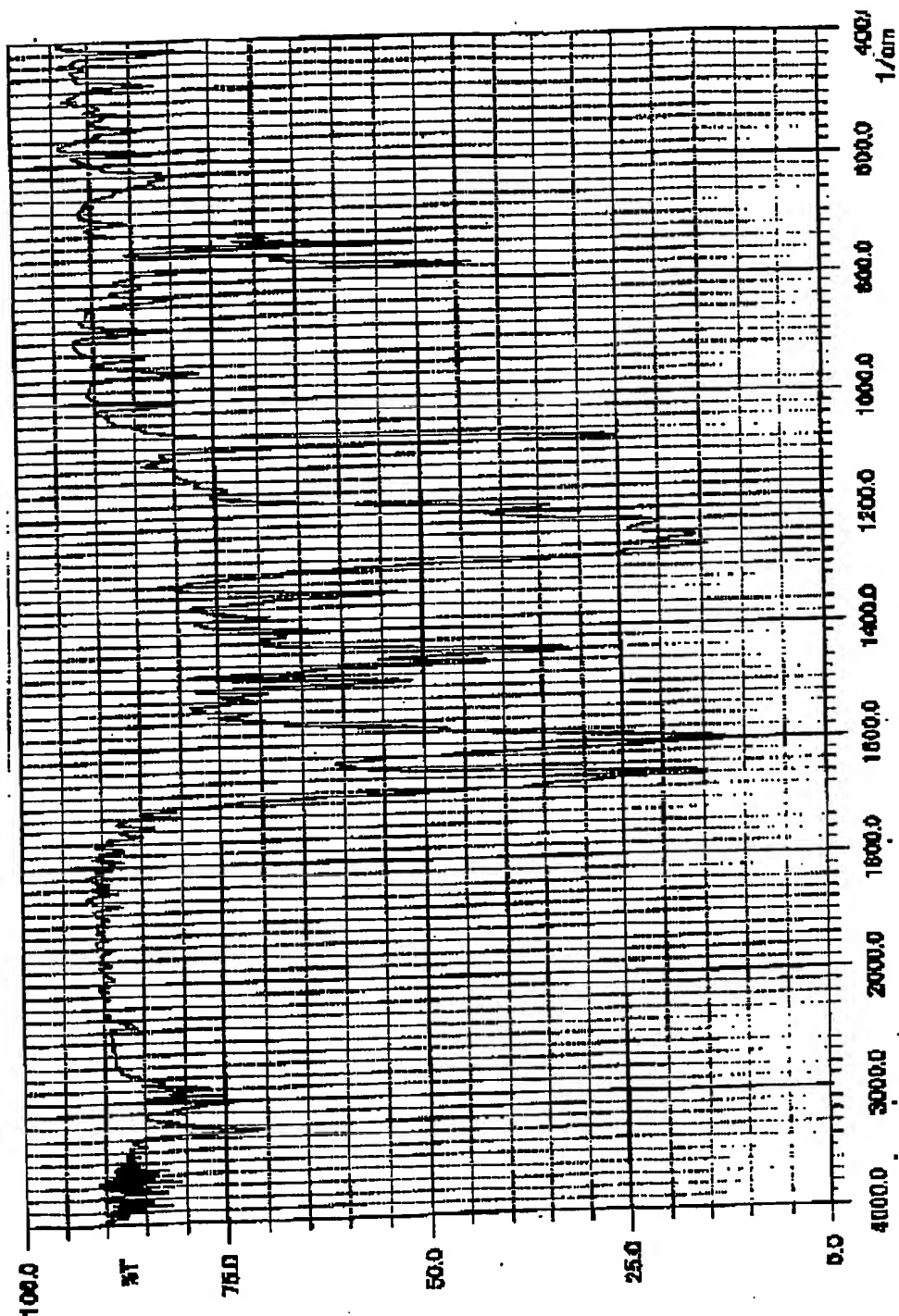
【图 6】



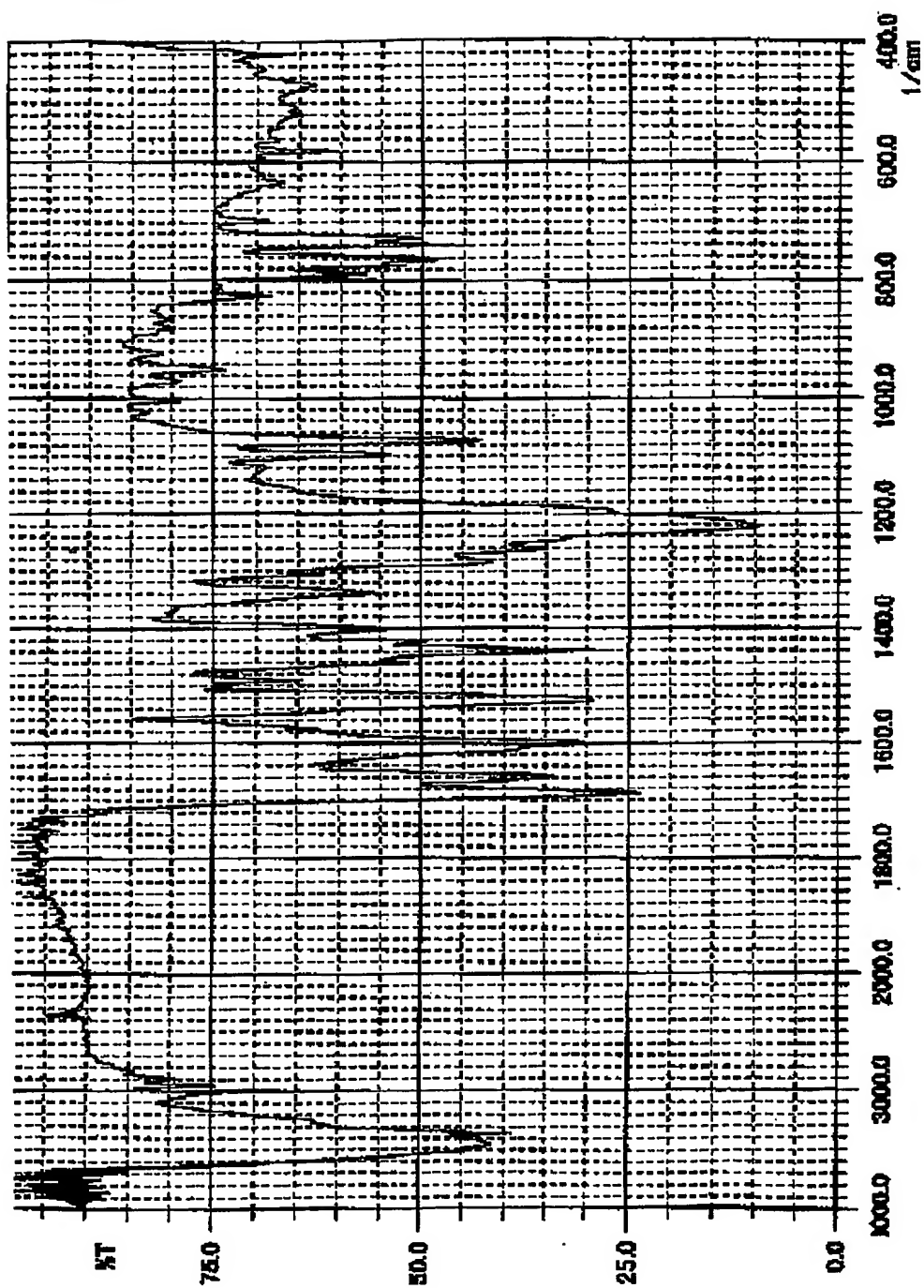
【図7】



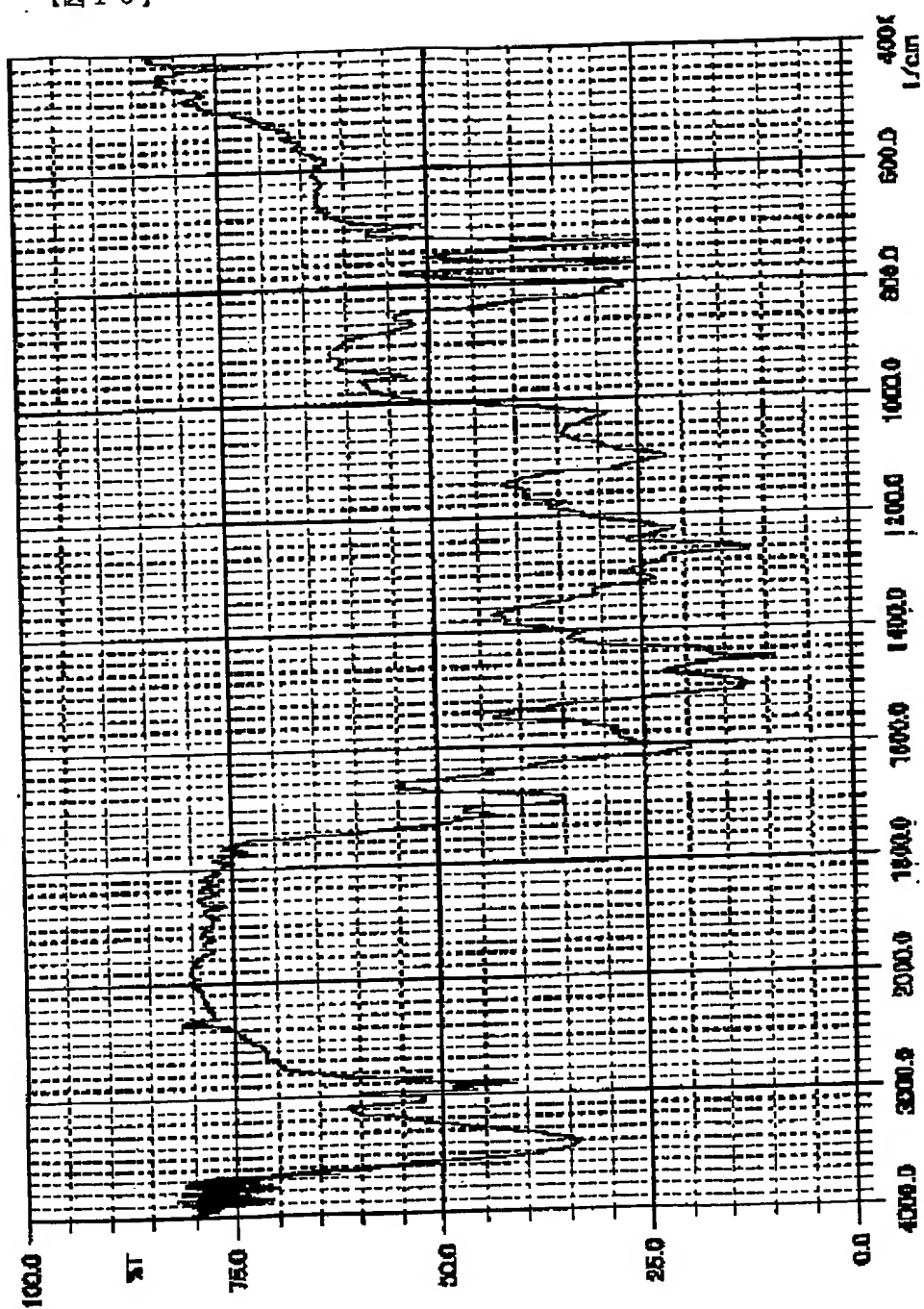
【図8】



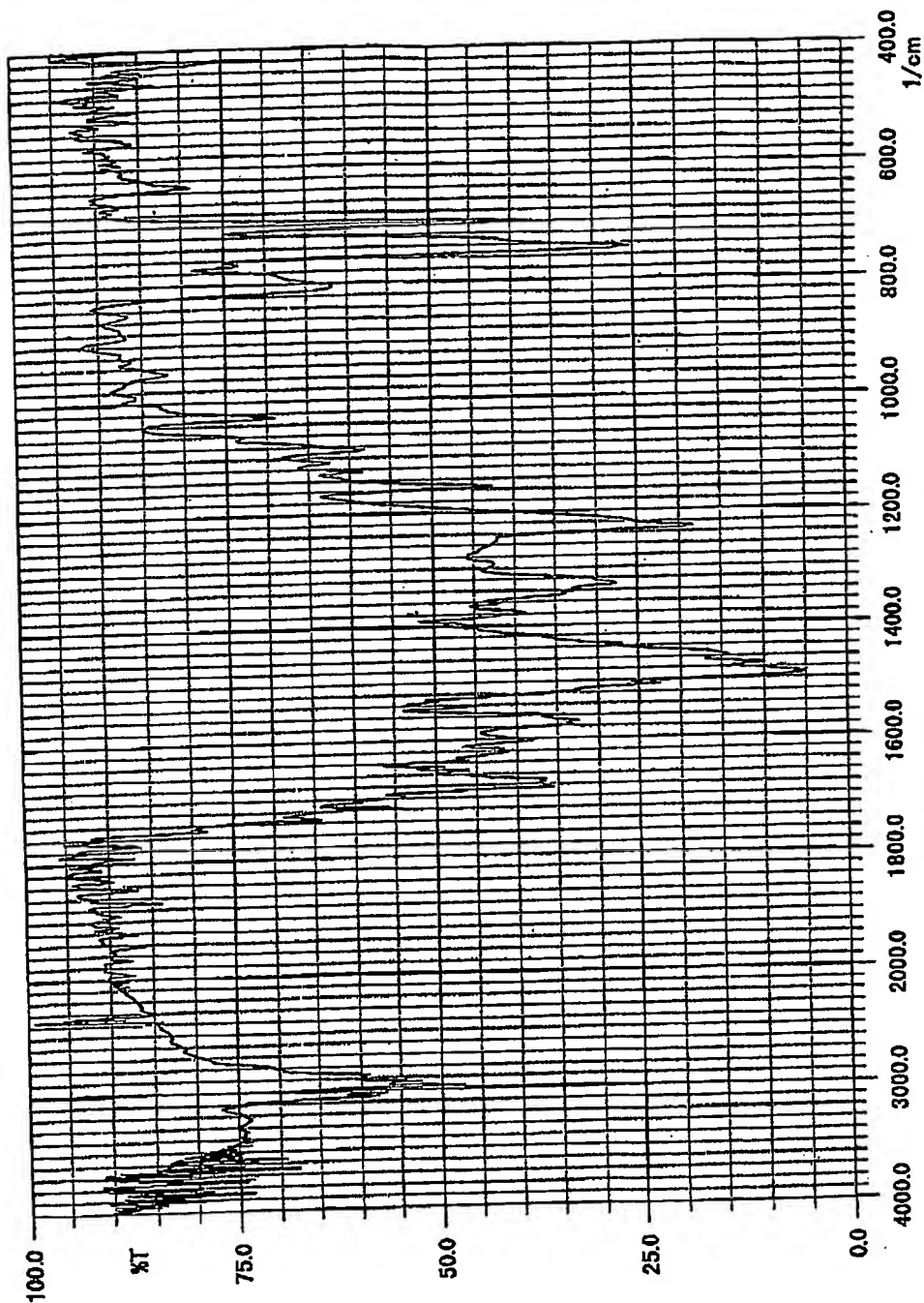
【图9】



【図10】

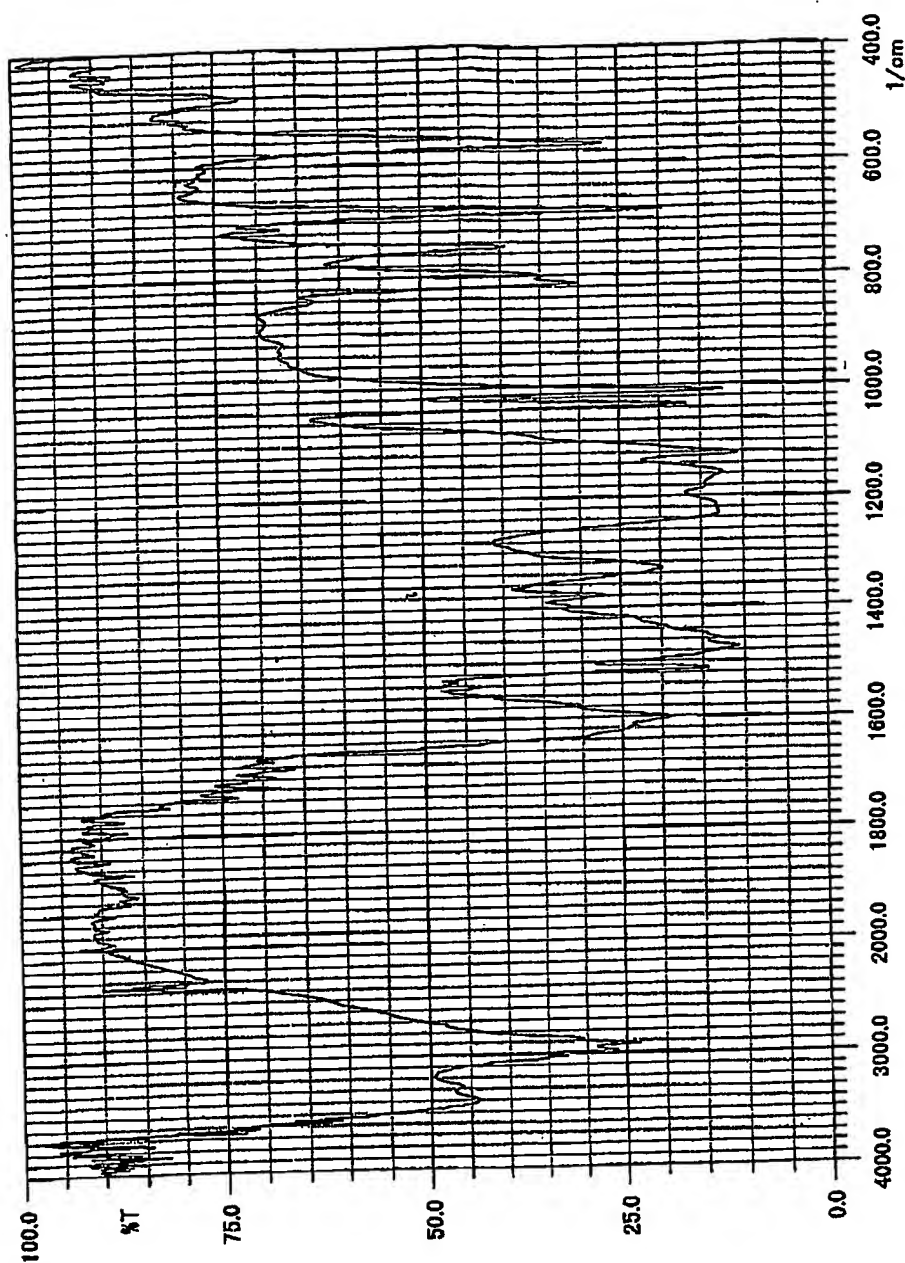


【図11】

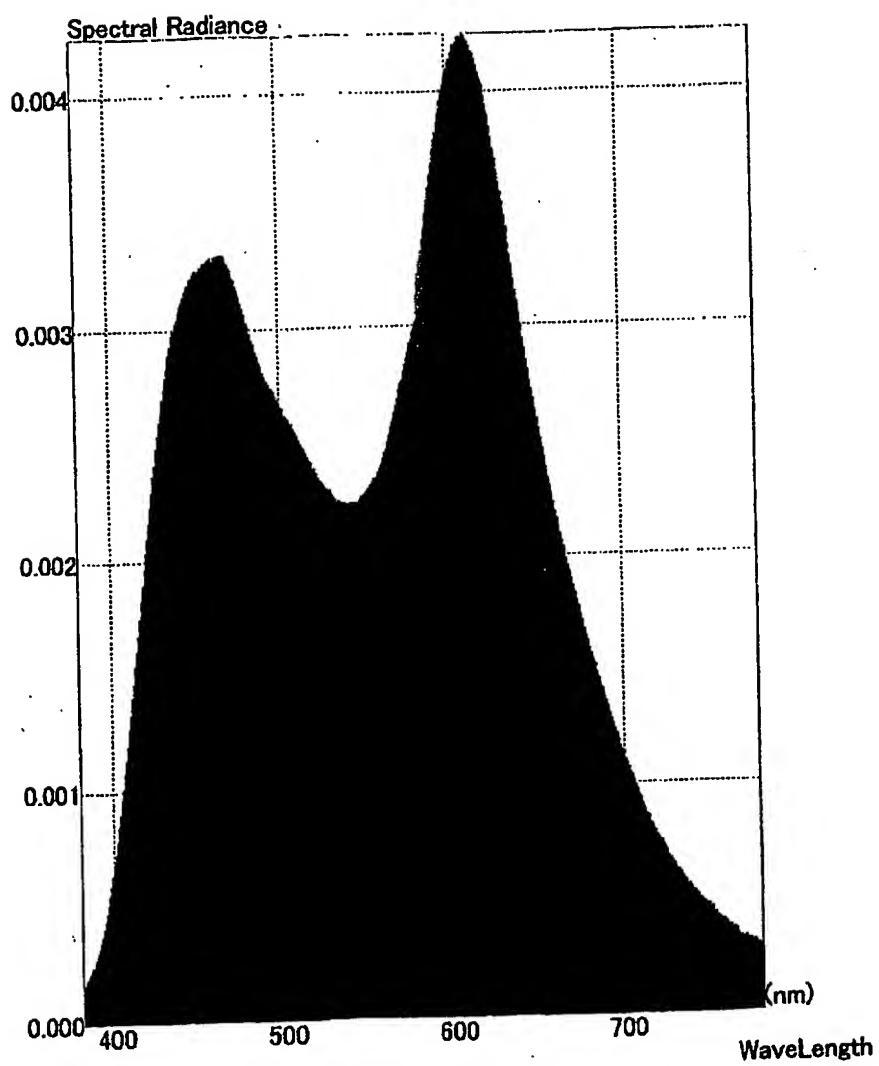


特2002-012223

【図12】

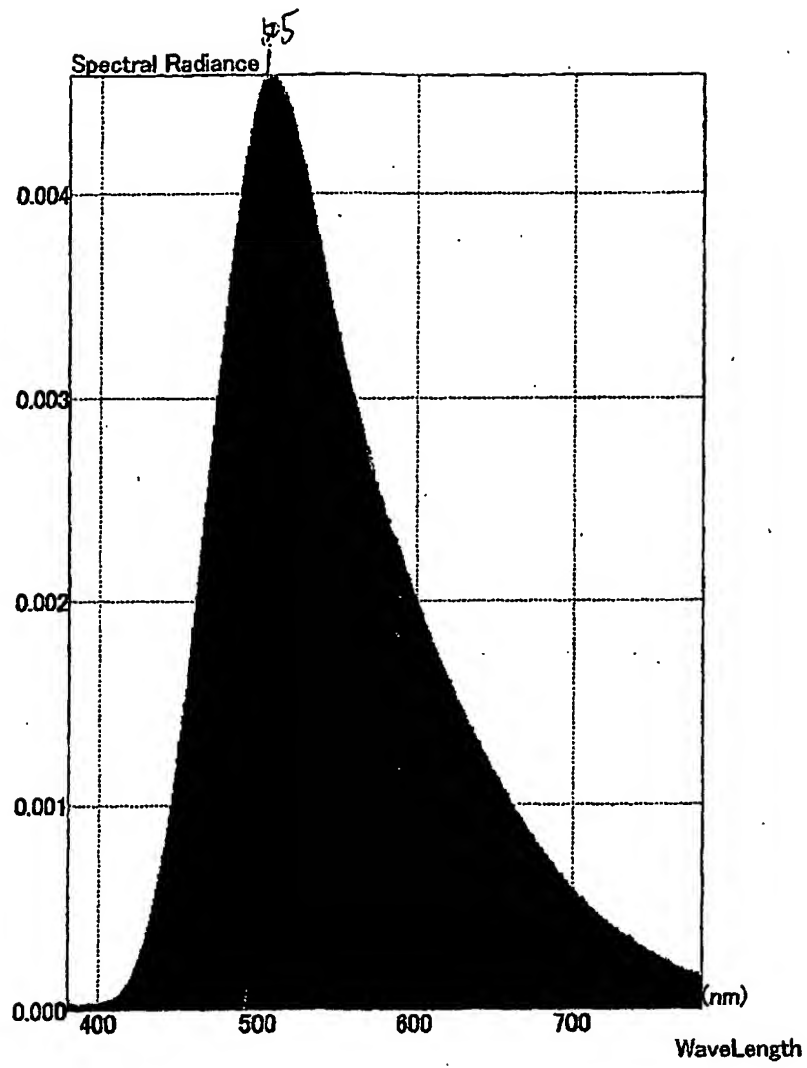


【図13】

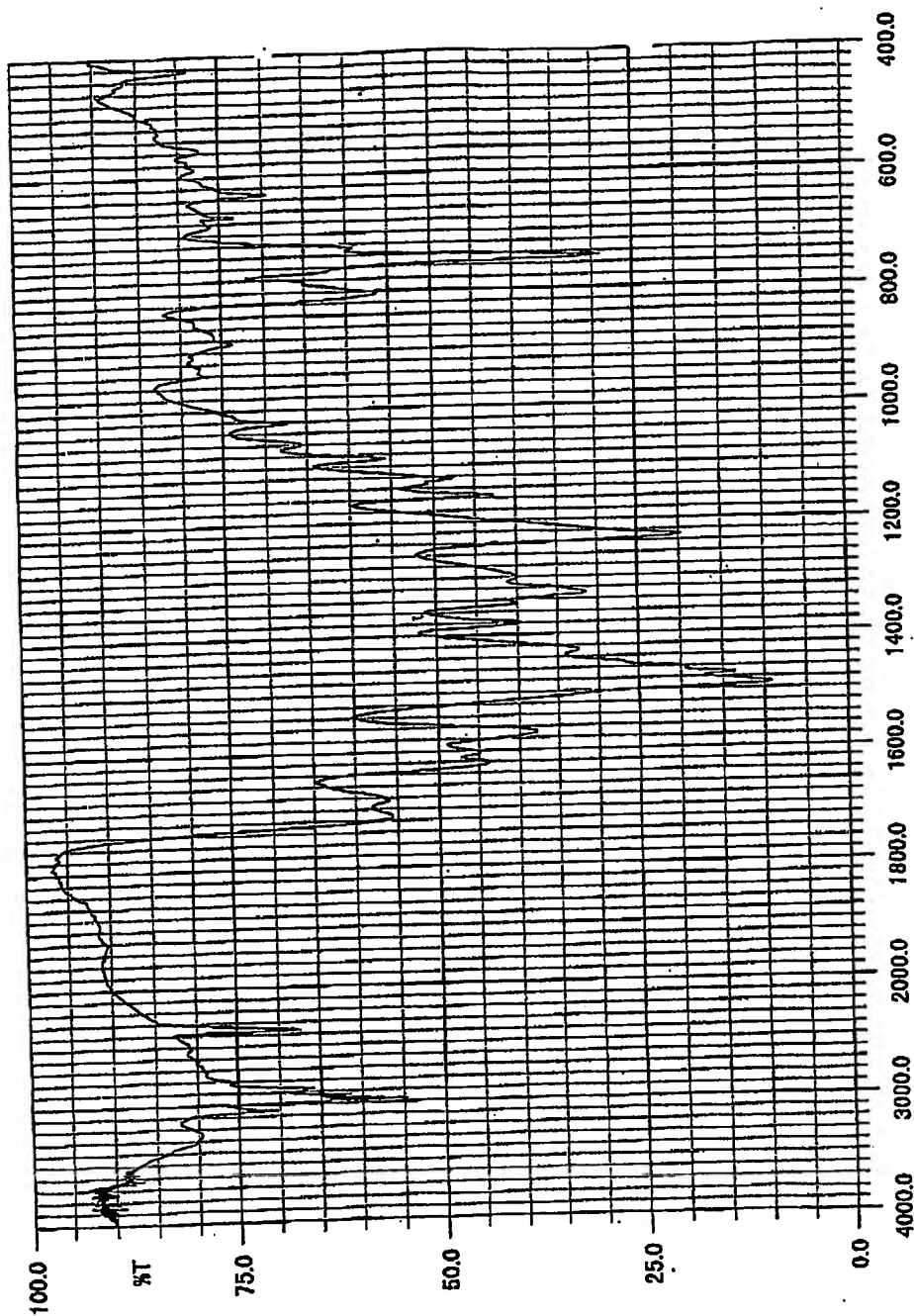


特2002-012223

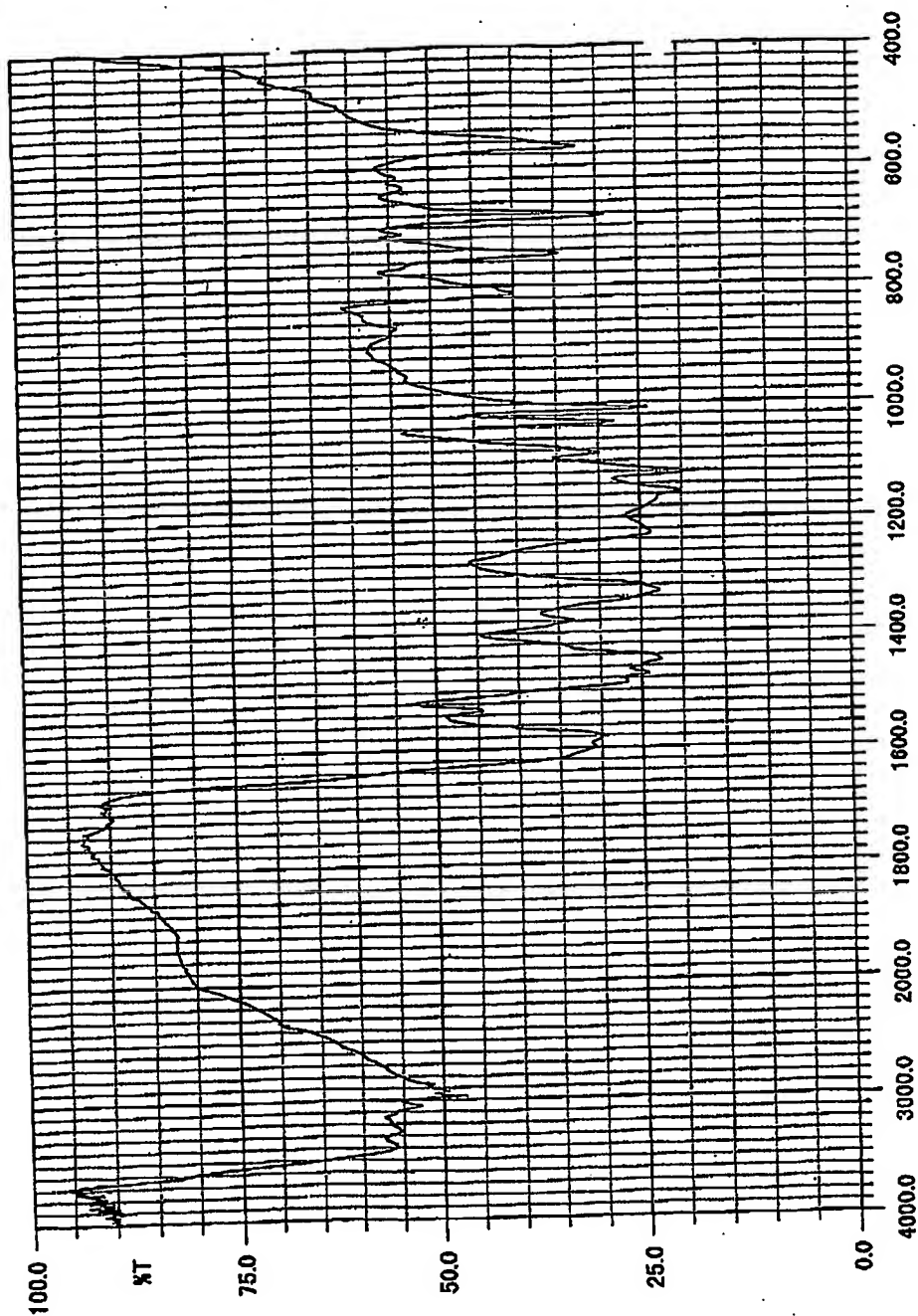
【図14】



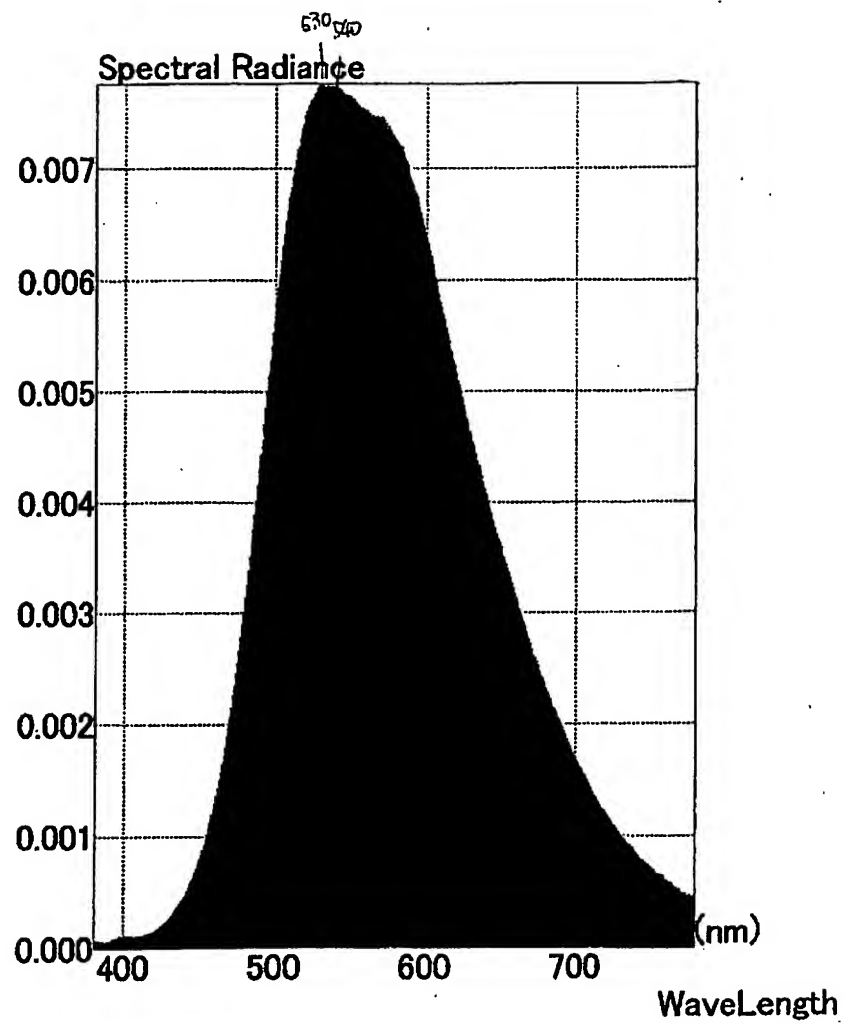
【図15】



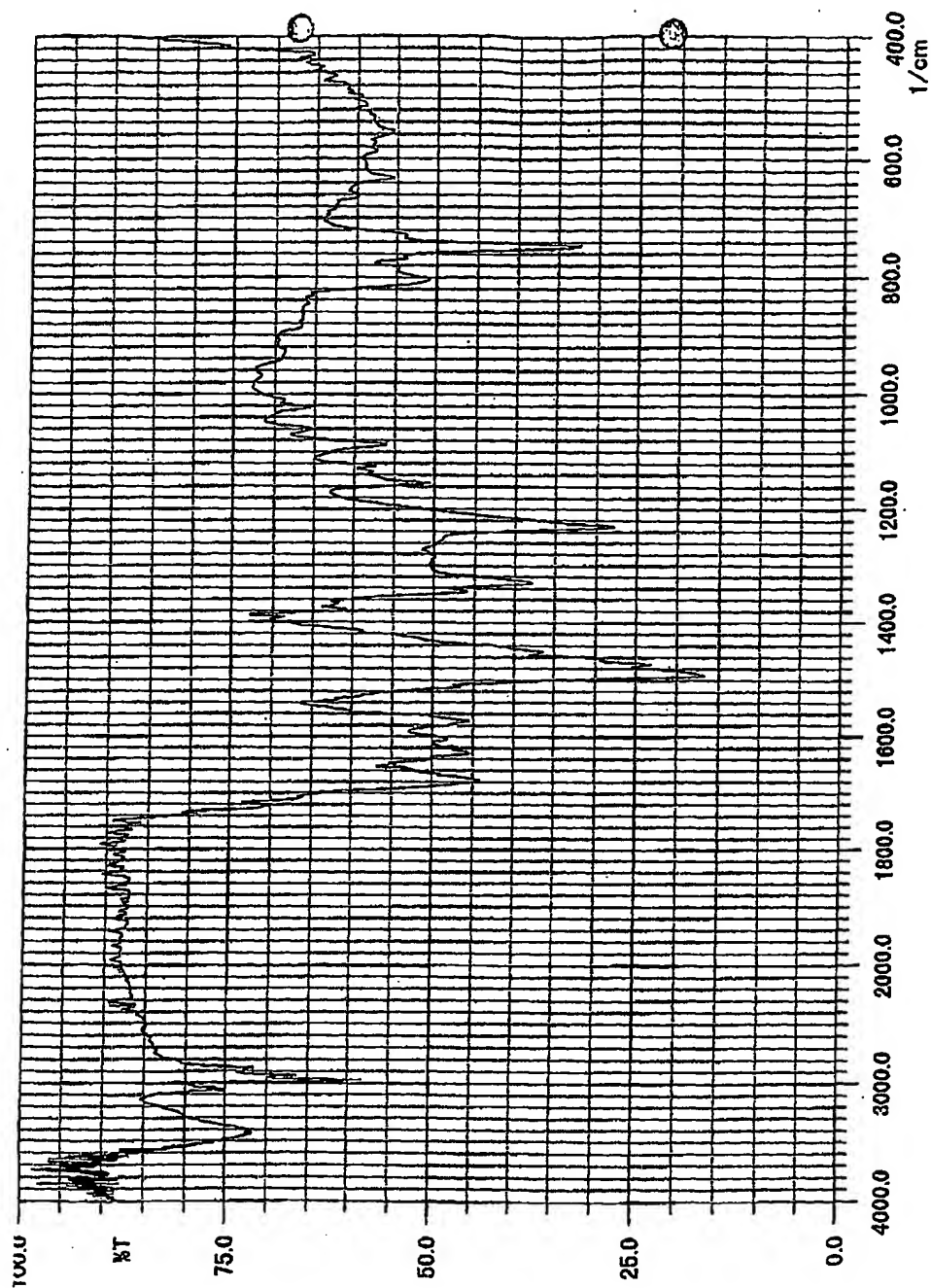
【図16】



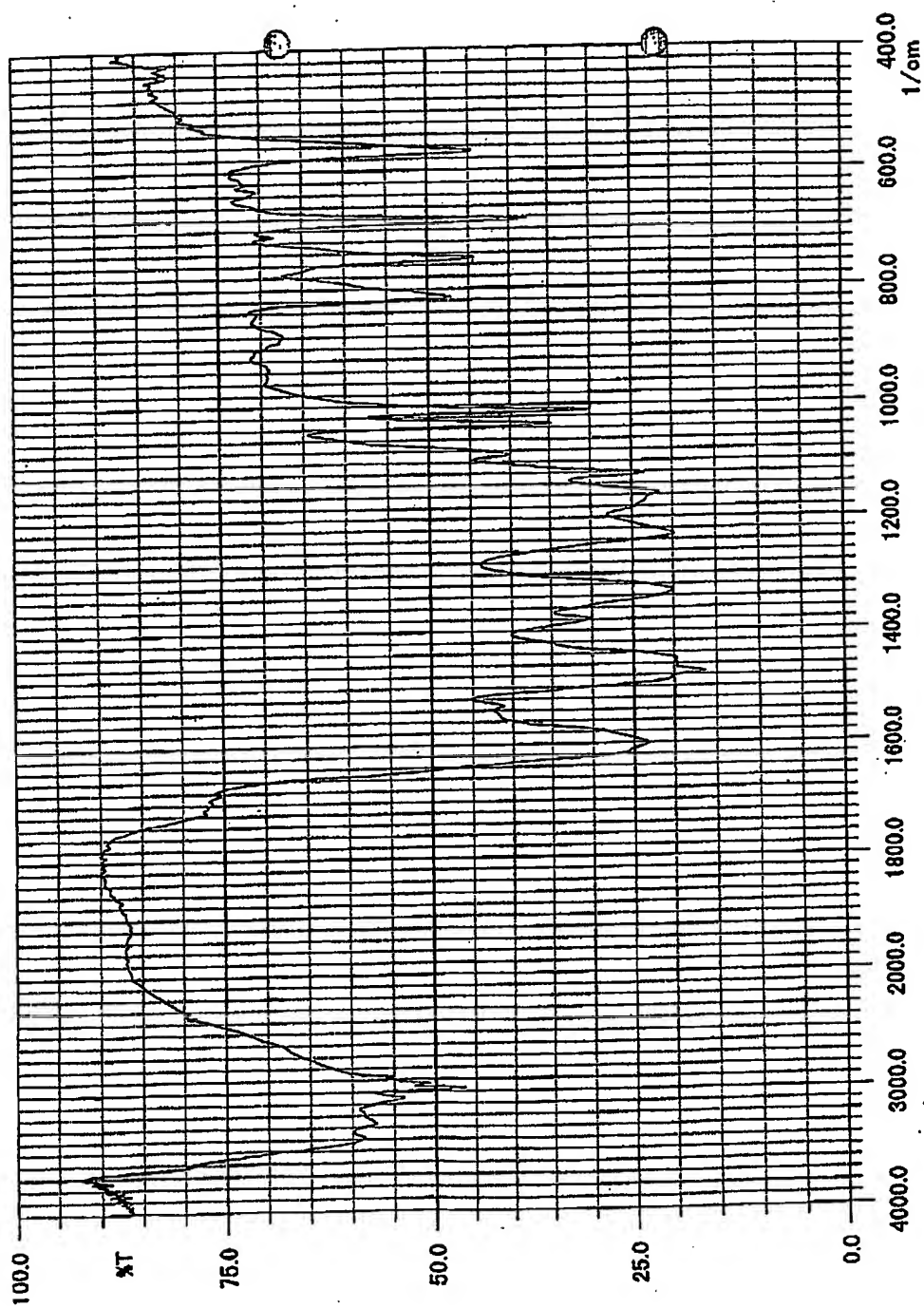
【図 1 7】



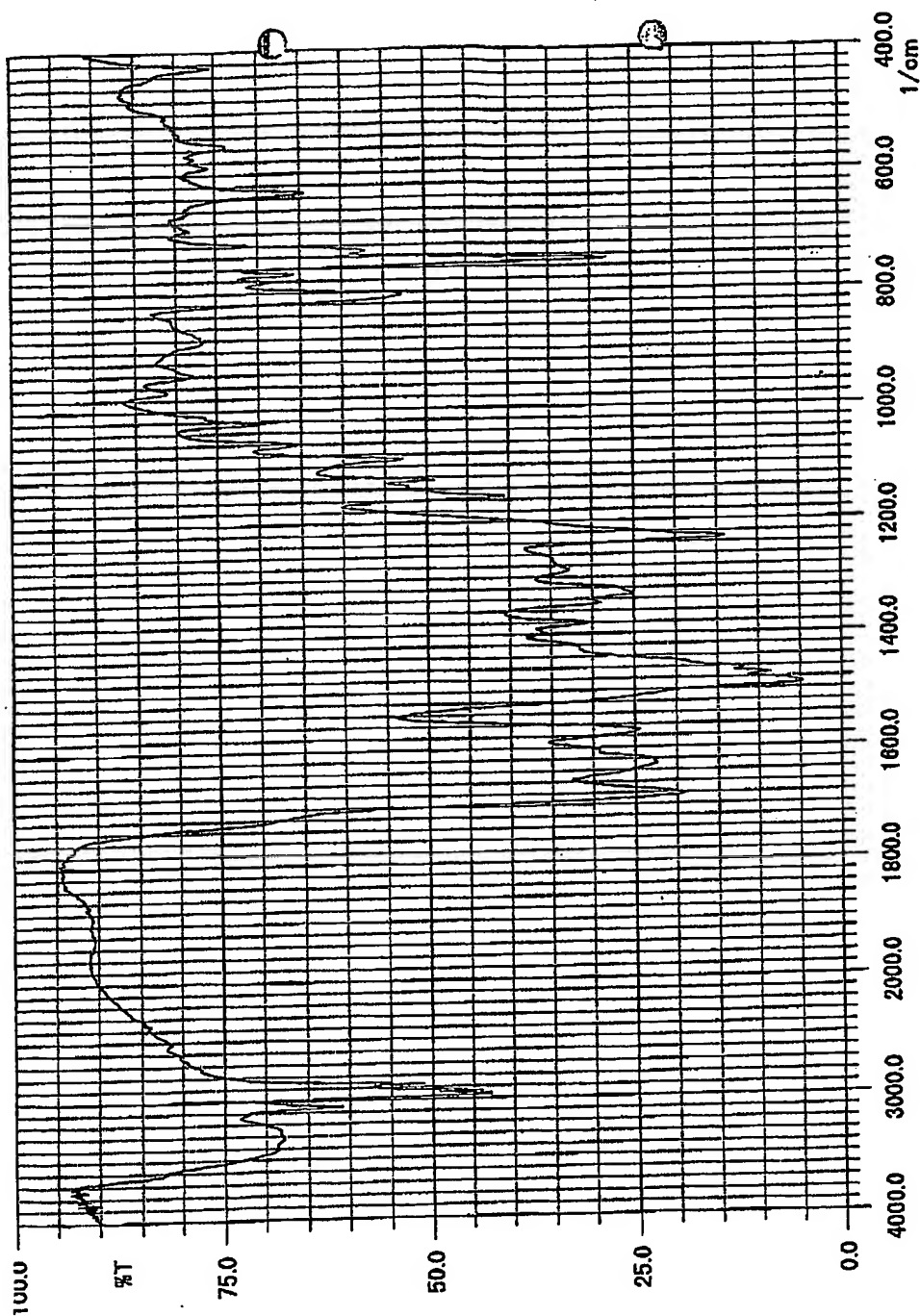
【図18】



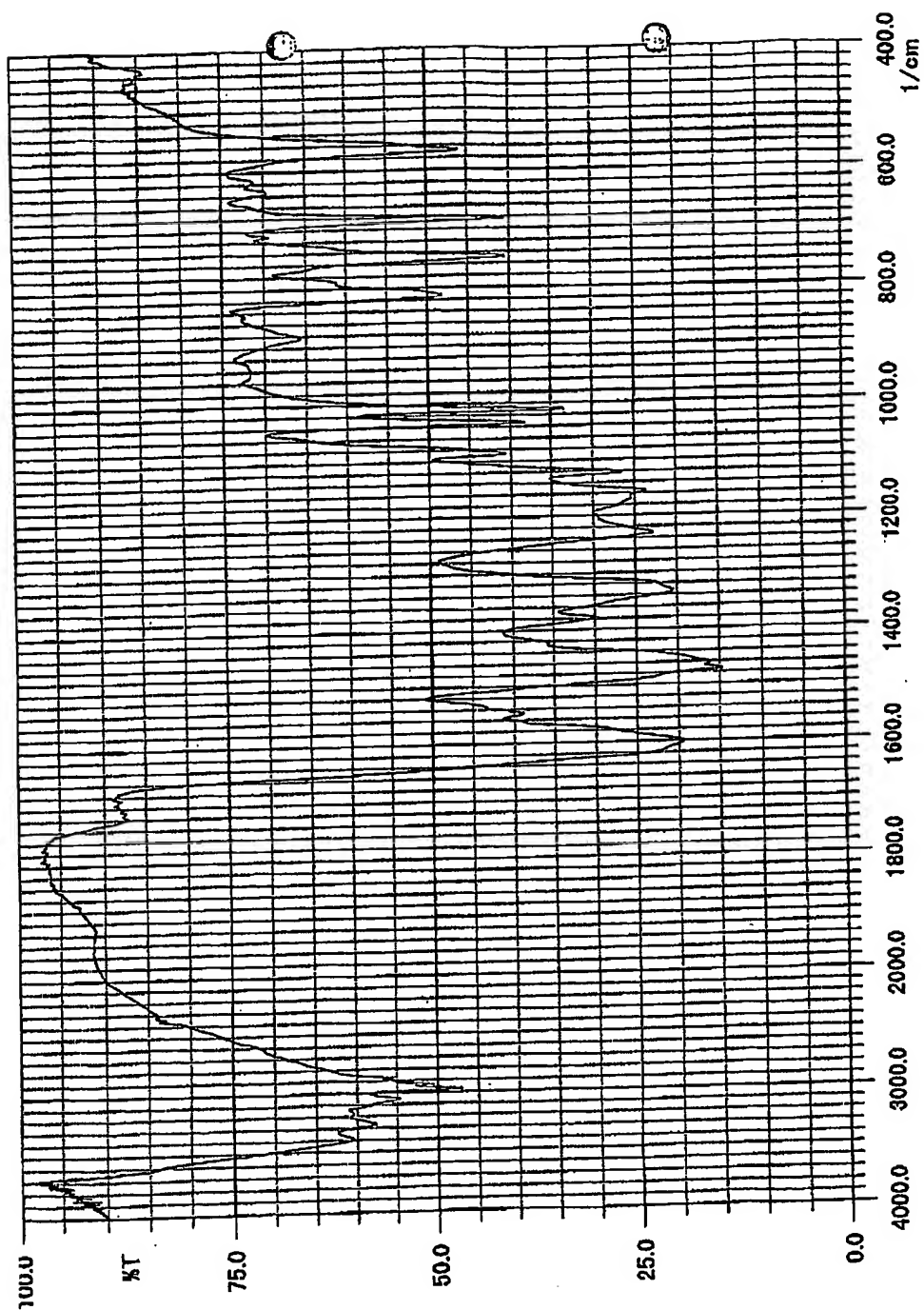
【図19】



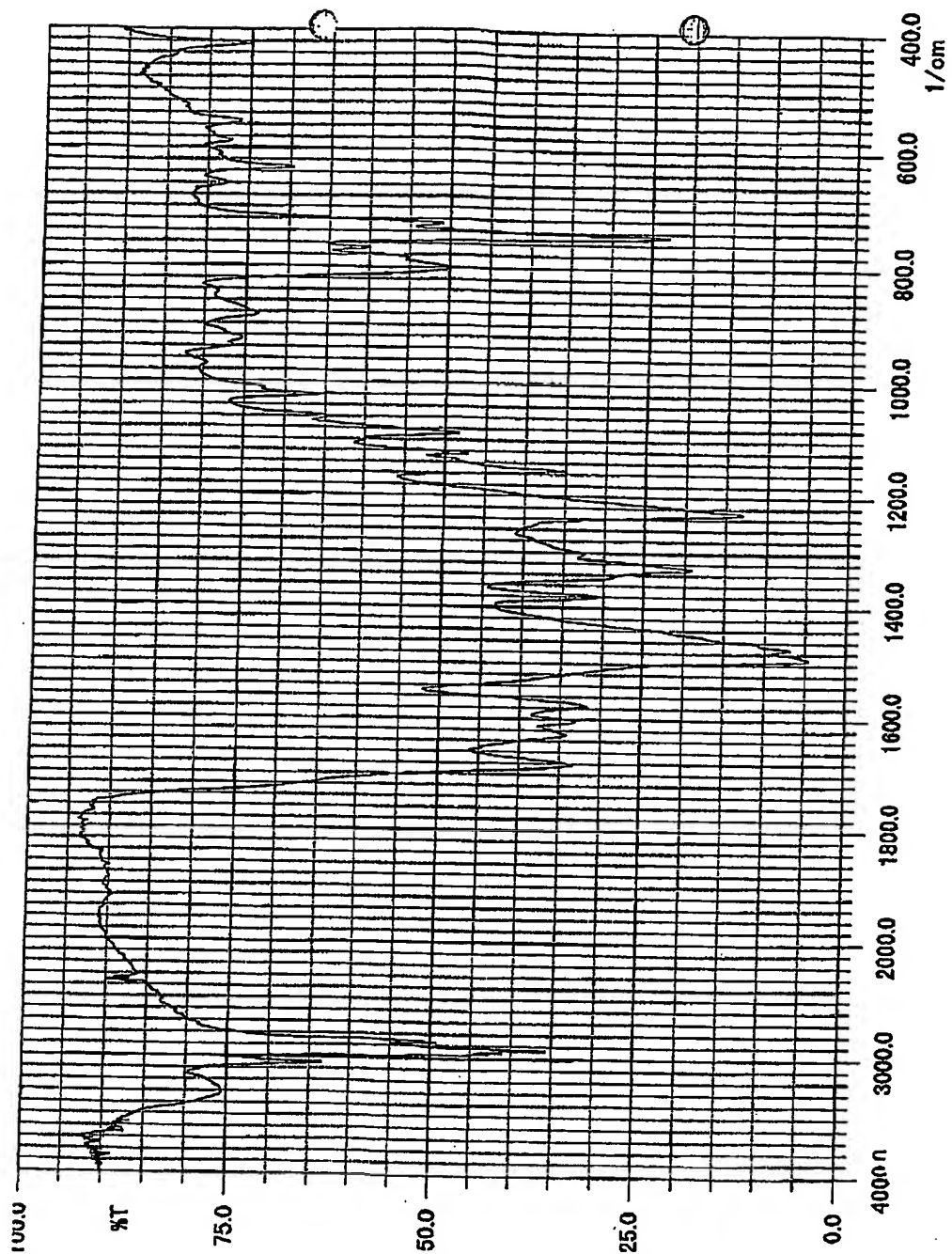
【図20】



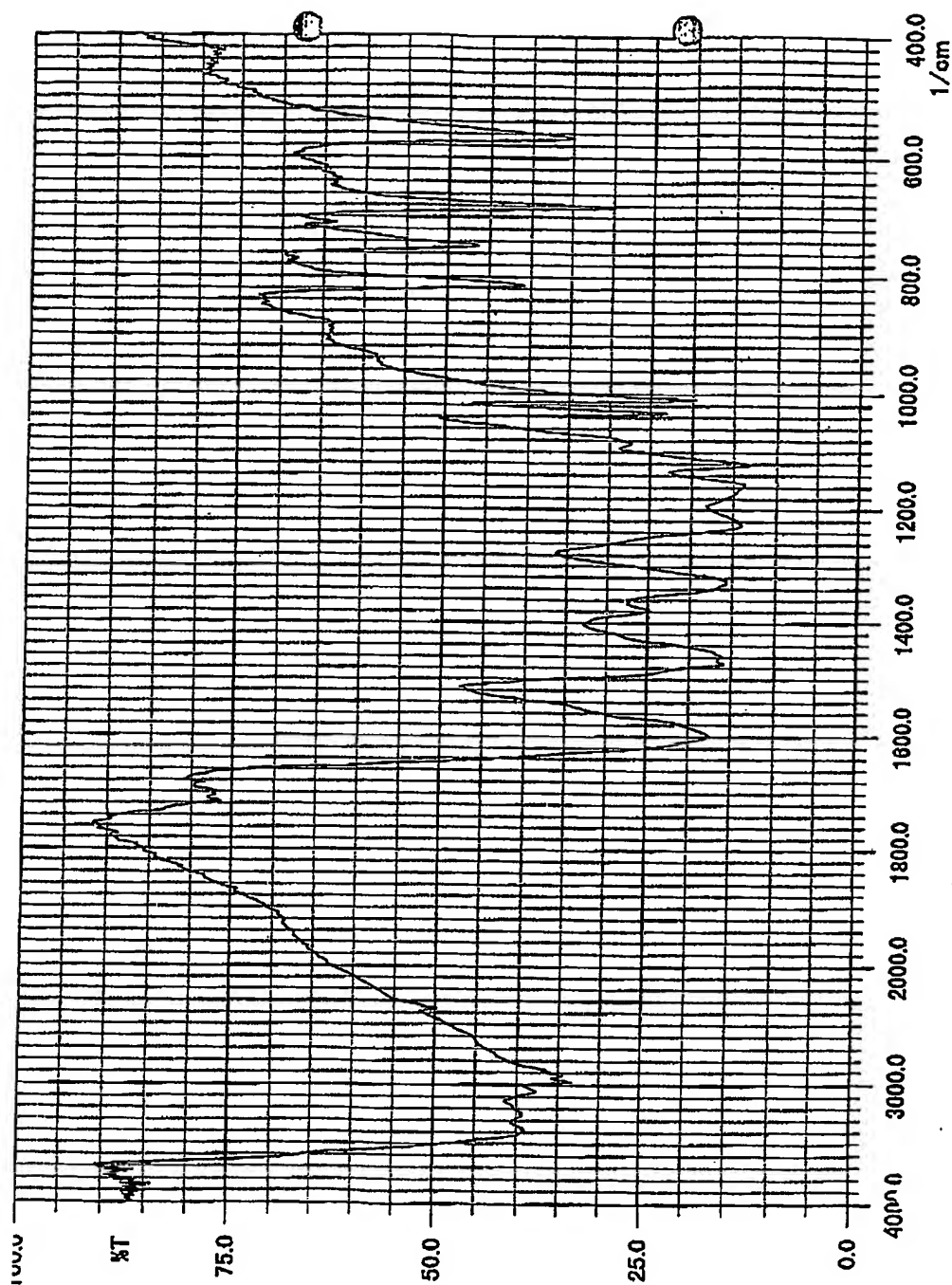
【図21】



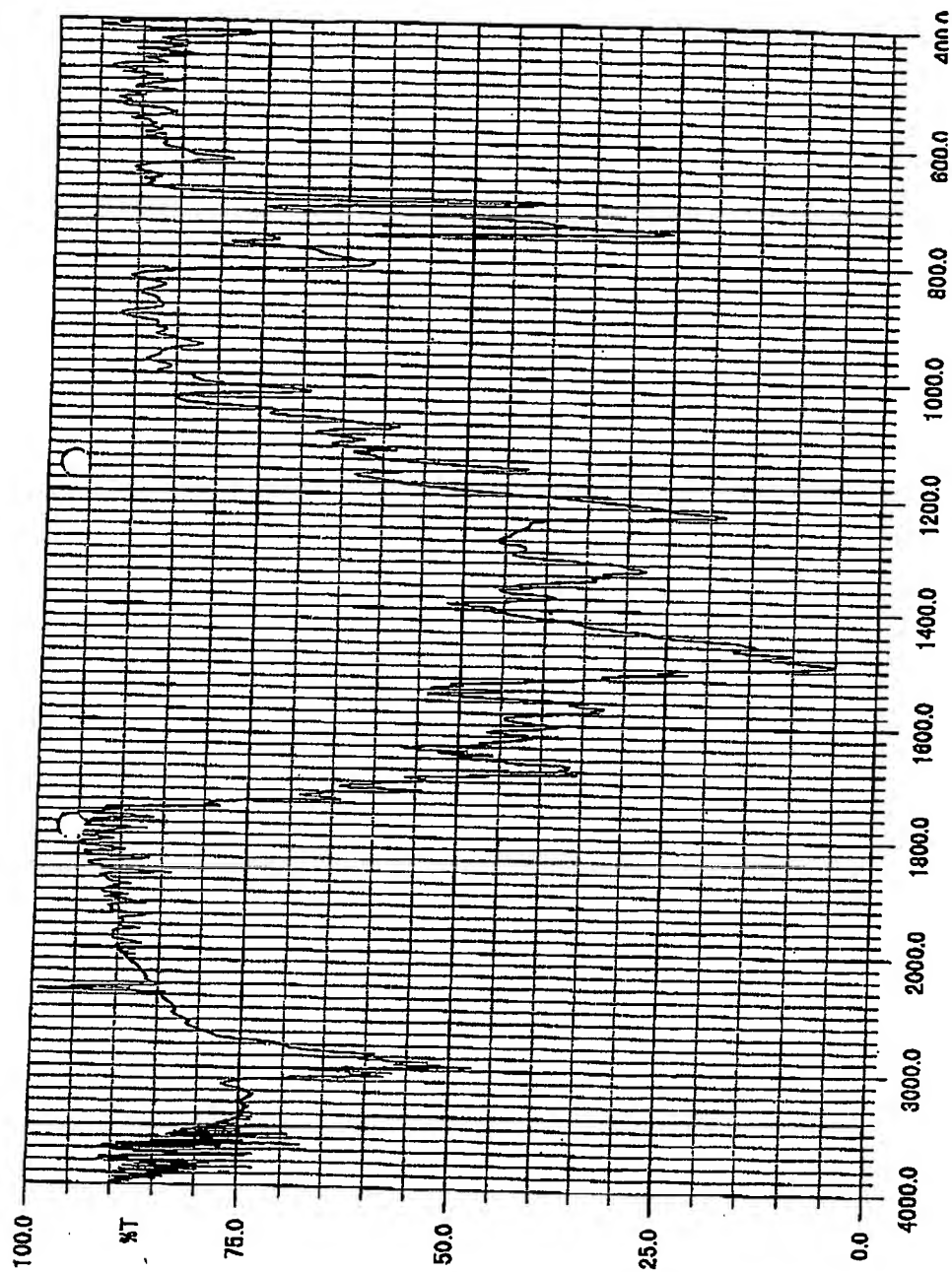
【図22】



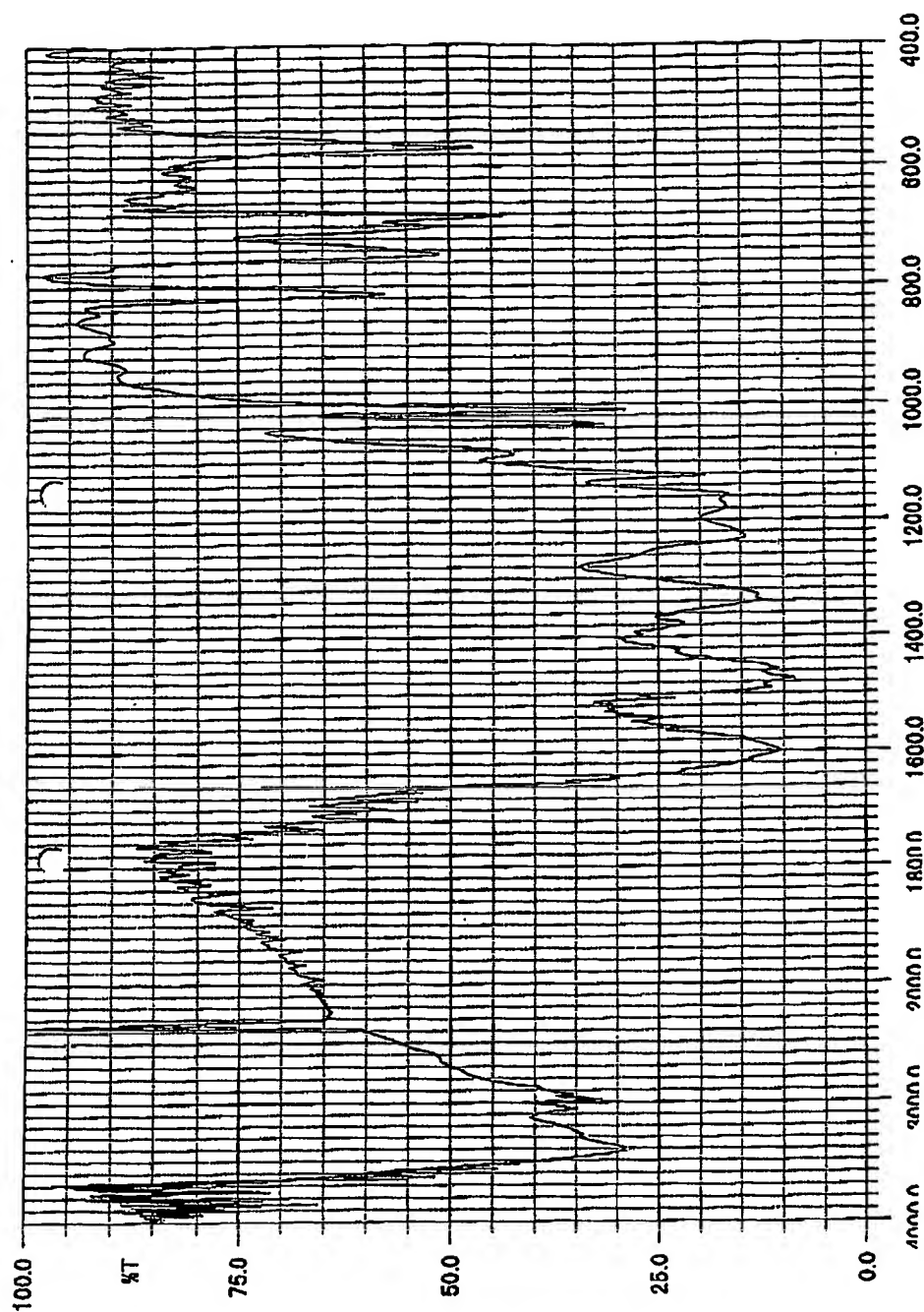
【図23】



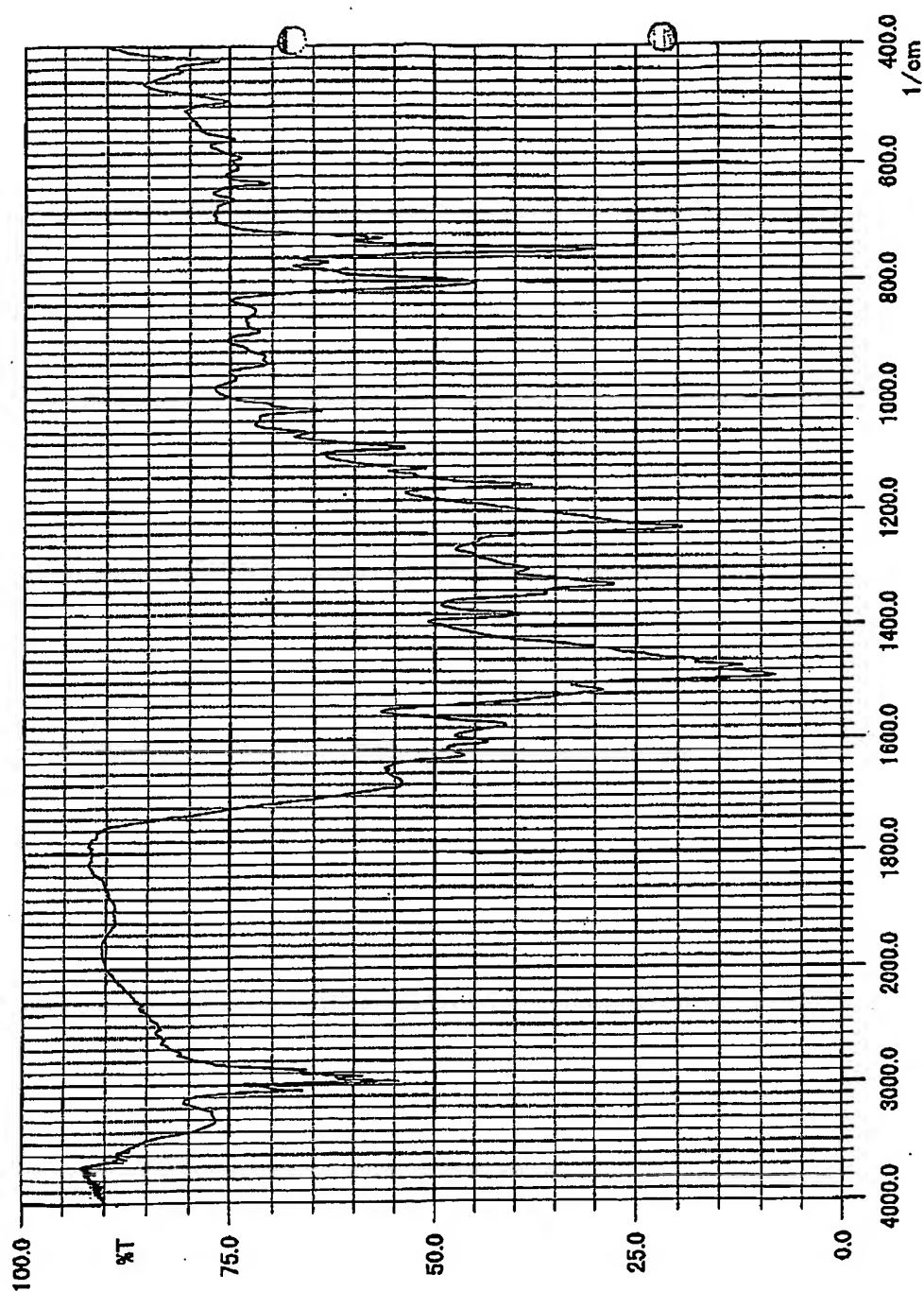
【図24】



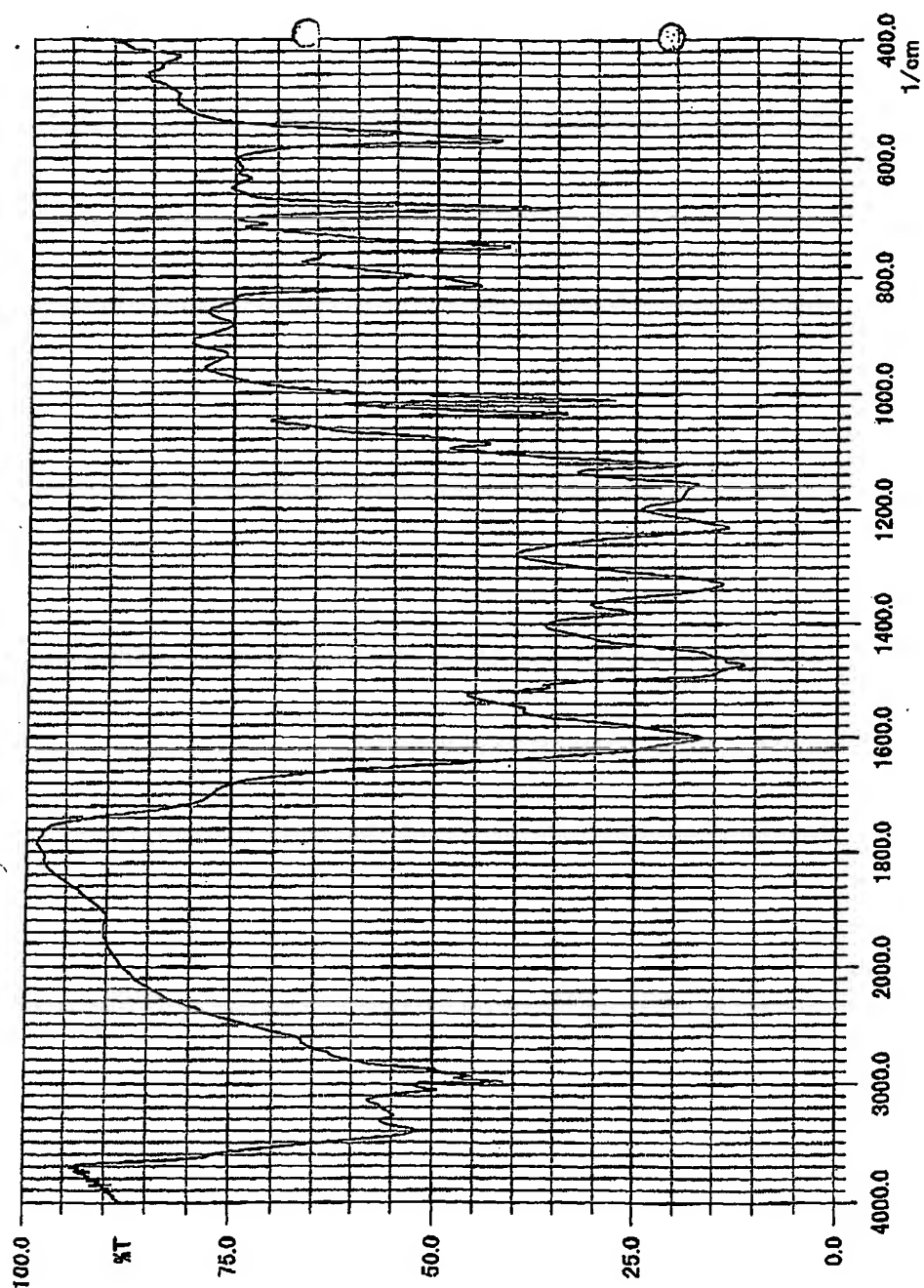
【図25】



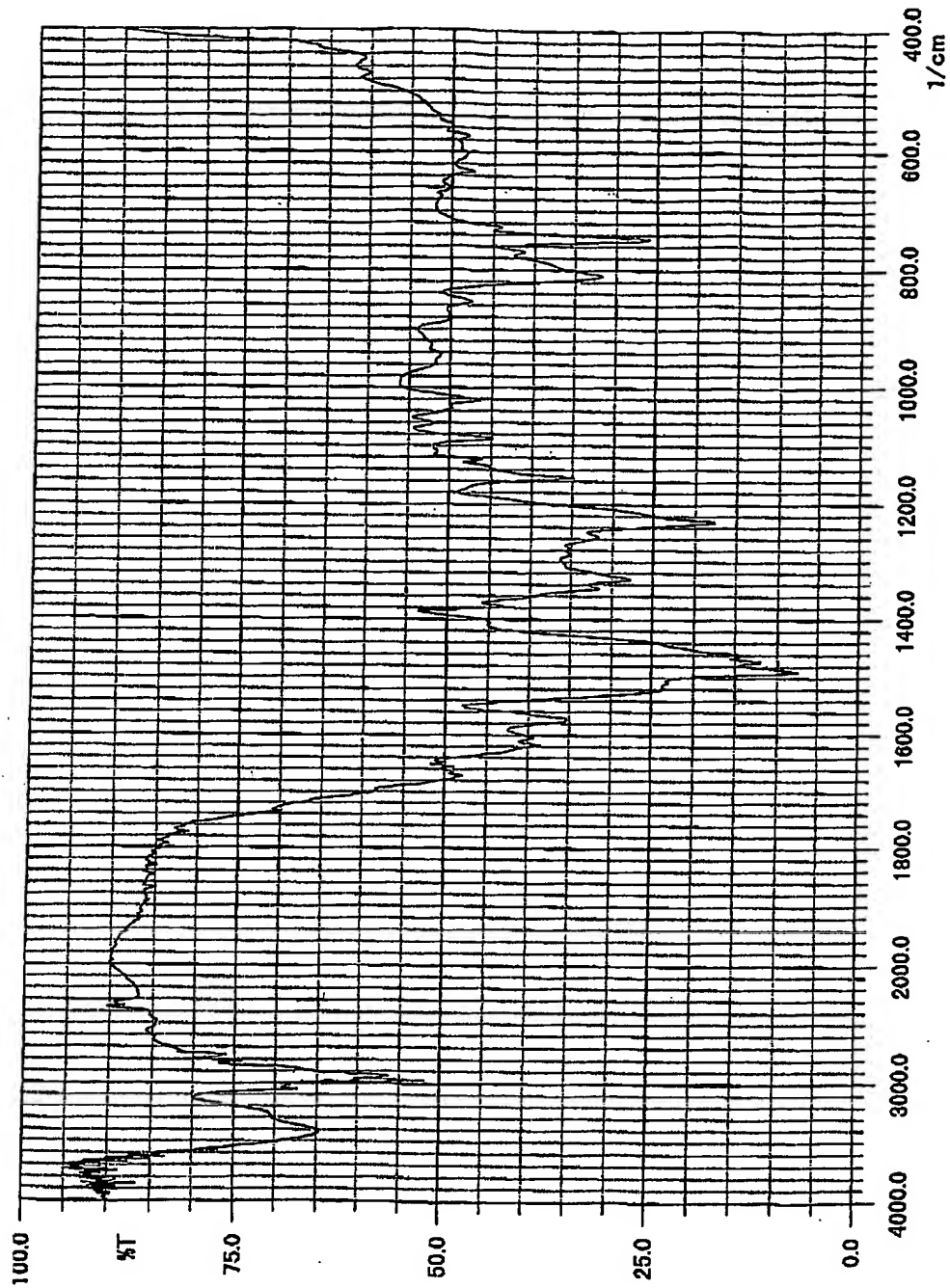
【図26】



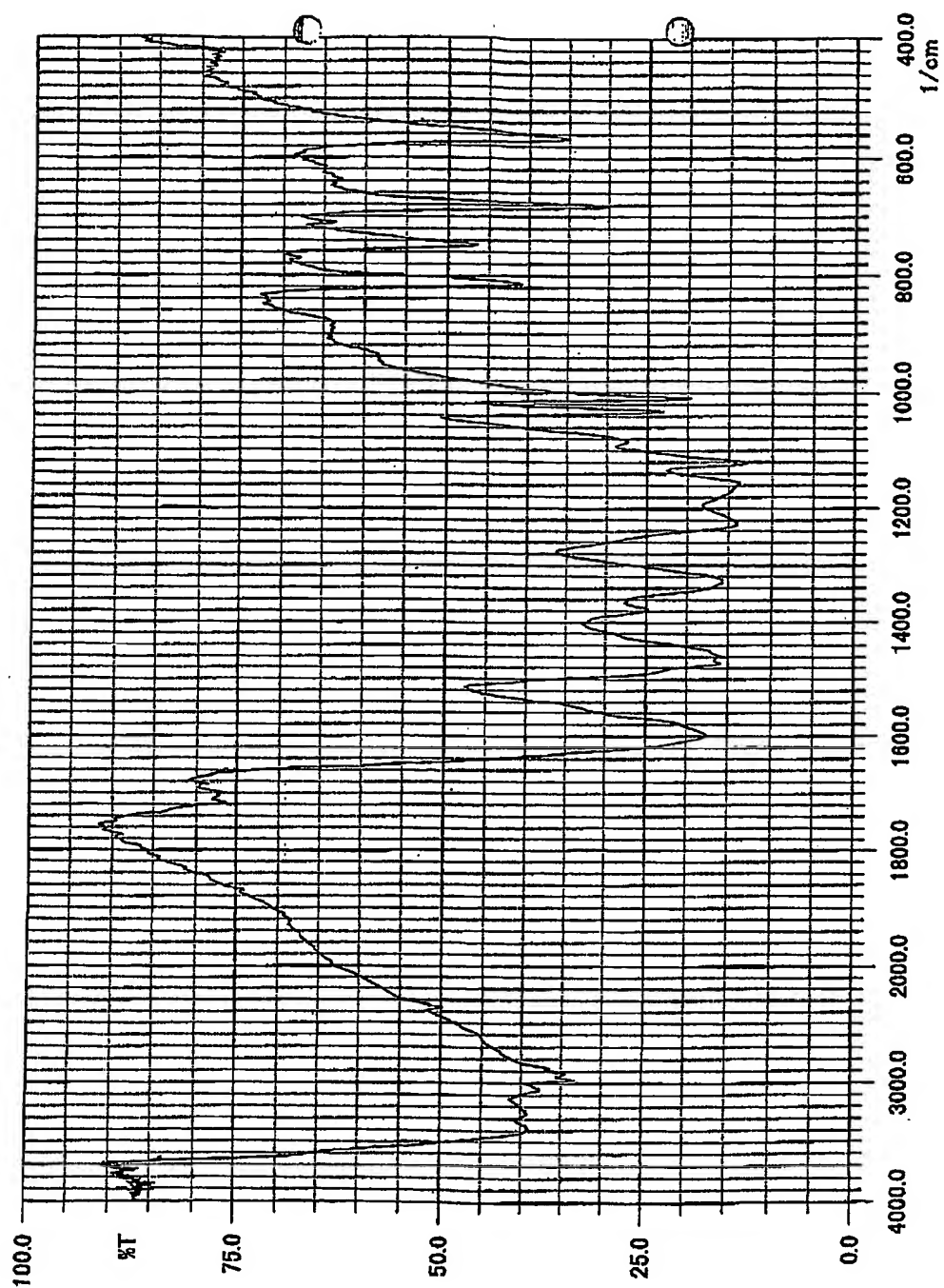
【図27】



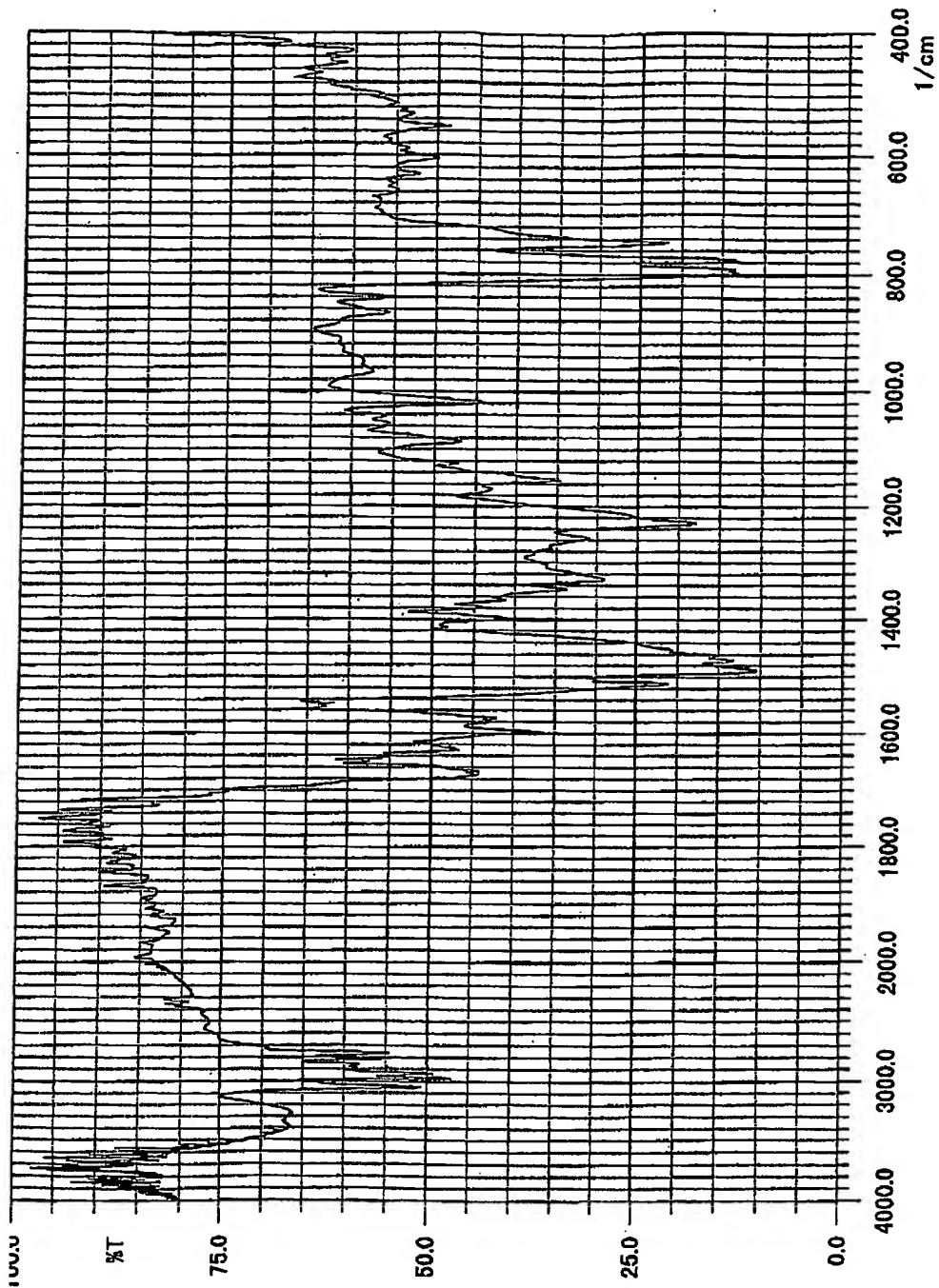
【図28】



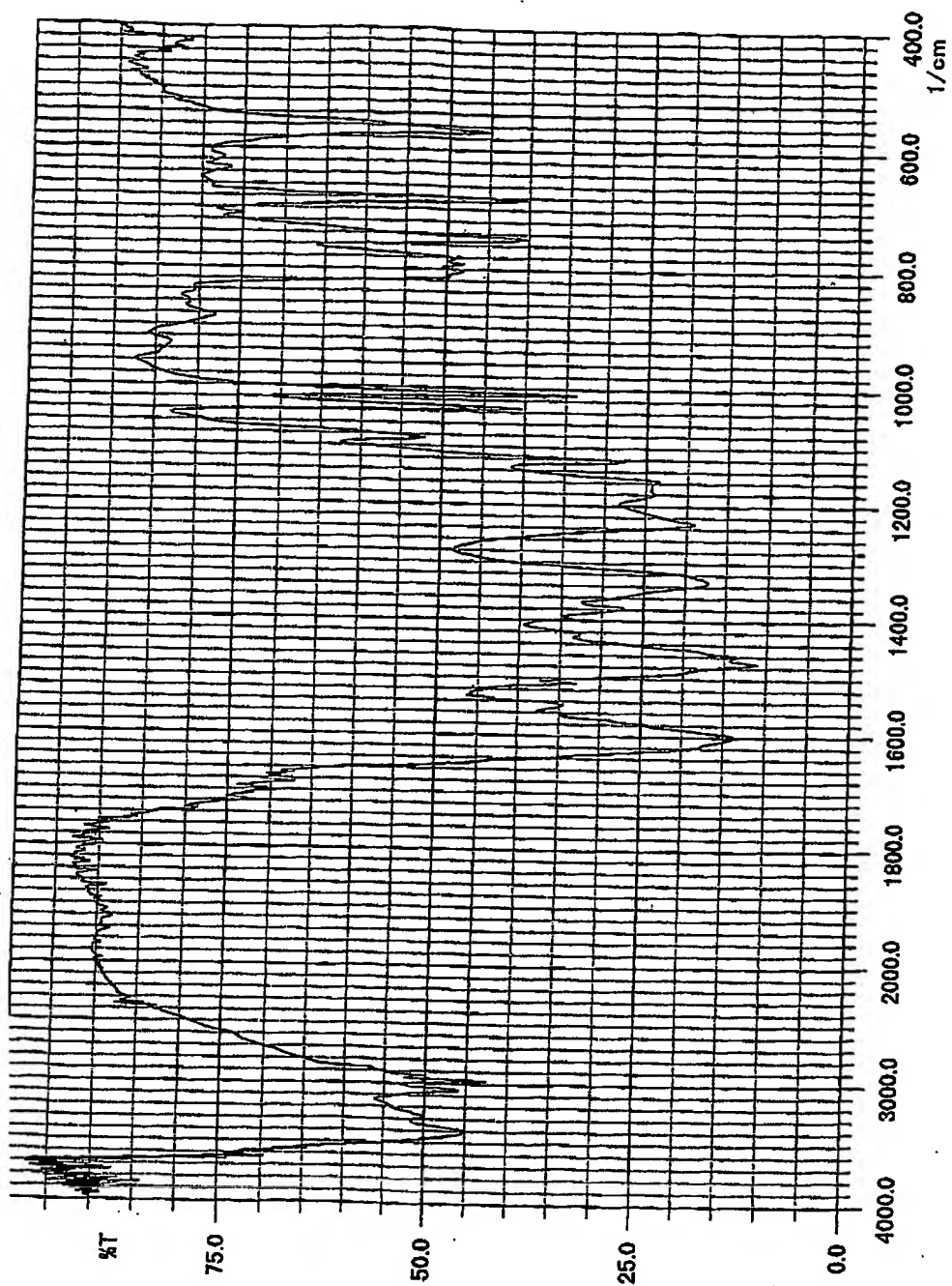
【図29】



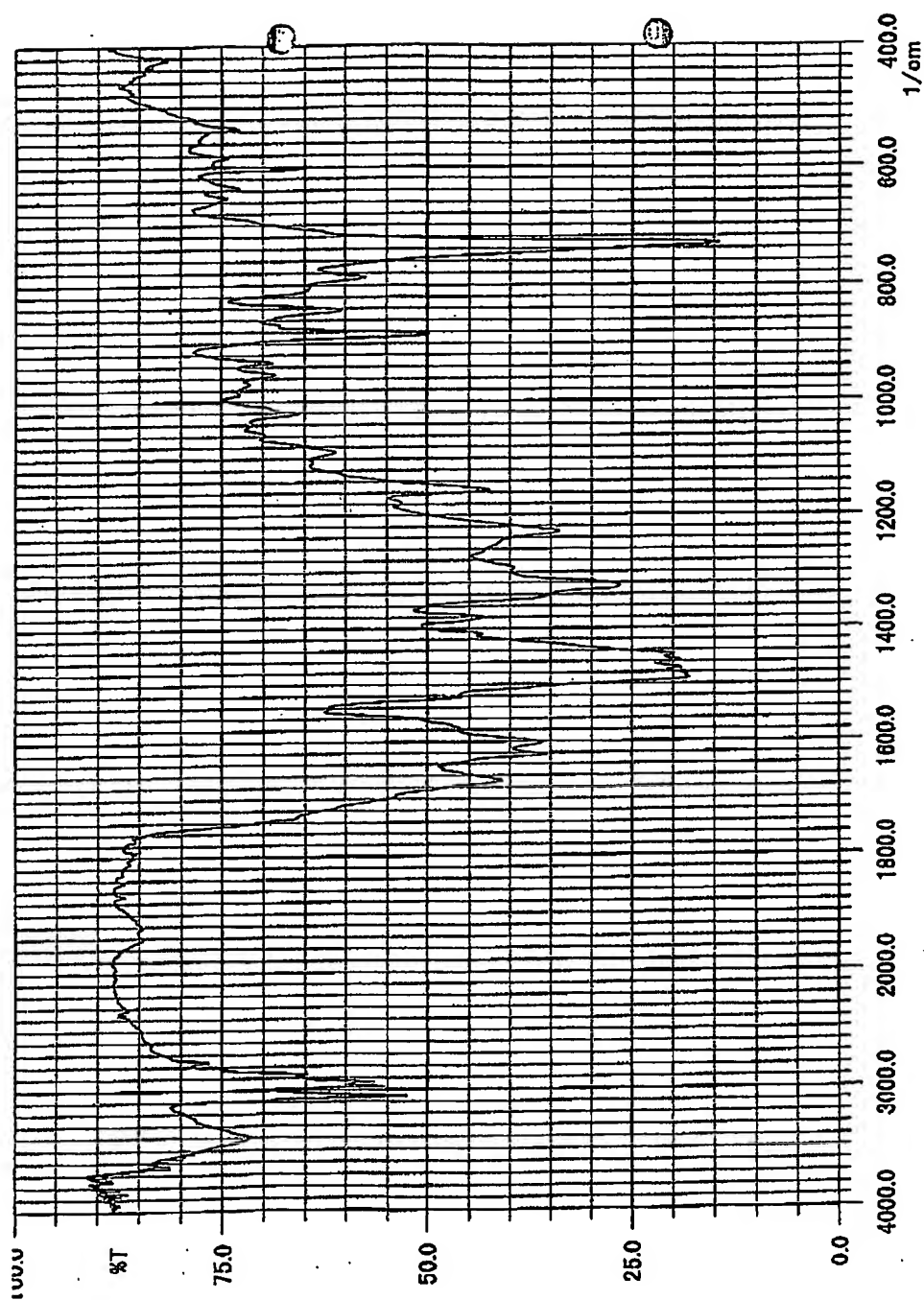
【図30】



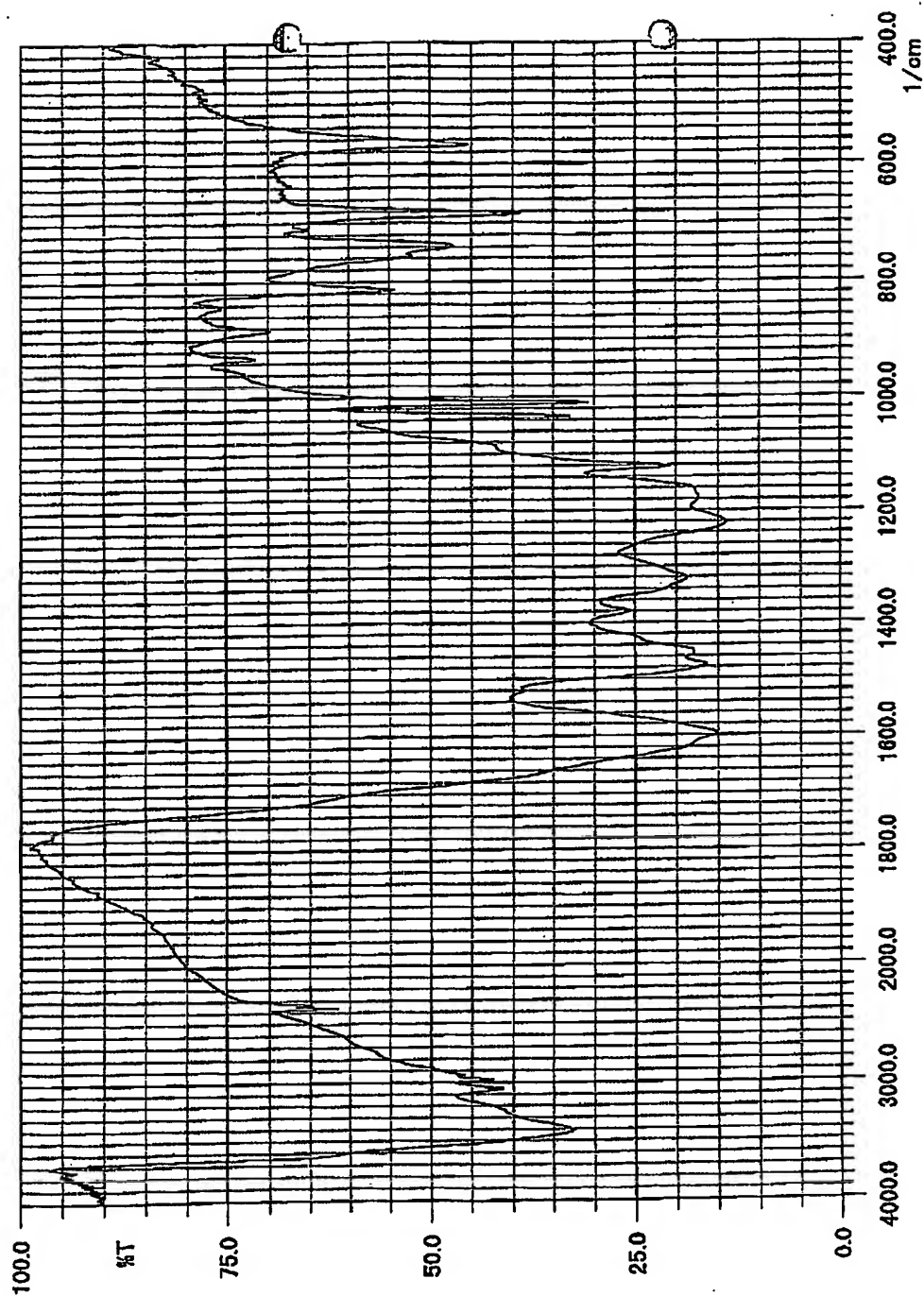
【図31】



【図32】



【図33】



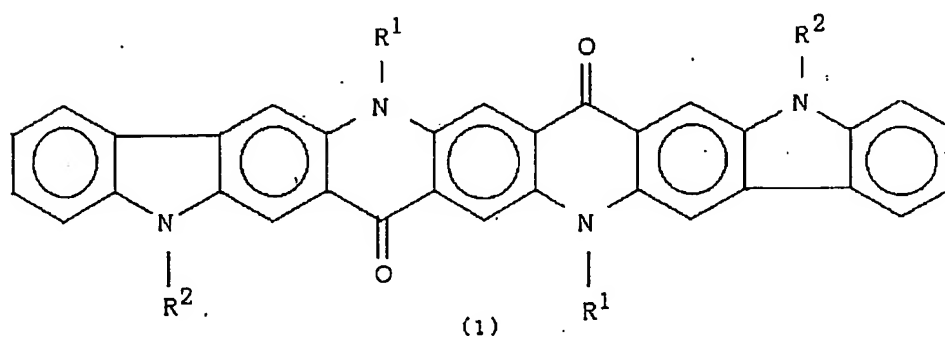
【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 単一化合物でありながら、RGBの発光ピークを有する蛍光スペクトルを有して白色発光可能な、堅牢で耐候性のある発光化合物を提供すること。

【解決手段】 キナクリドン骨格を有する下記構造の化合物。

【化1】



【選択図】 図7

特2002-012223

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2002-012223
受付番号	50200073298
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0095
作成日	平成14年 1月24日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成14年 1月21日

次頁無

特2002-012223

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000108546]

1. 変更年月日 1990年 8月16日
[変更理由] 新規登録
住 所 東京都港区高輪2丁目21番44号
氏 名 タイホー工業株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.